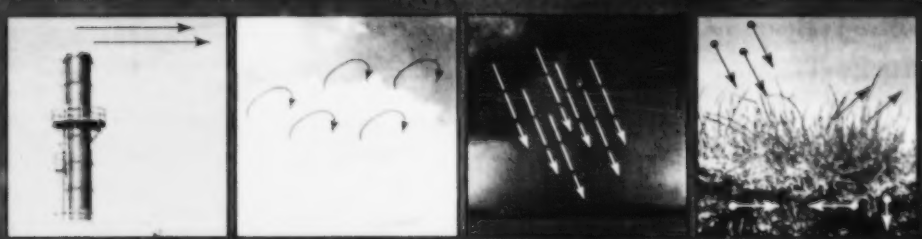
L'organisme de réglementation nucléaire du Canada

Étude sur le devenir environnemental du tritium dans l'atmosphère

Volet du projet d'études sur le tritium

INFO-0792



Rapport préparé pour la CCSN par EcoMetrix Incorporated, en collaboration avec RWDI Air Inc.

Décembre 2009

Commission canadienne de sûreté nucléaire
Canadian Nuclear Safety Commission
Canada

Étude sur le devenir environnemental du tritium dans l'atmosphère

© Ministre de Travaux publics et Services gouvernementaux Canada 2009
Numéro de catalogue CC172-51/2009F-PDF
ISBN 978-1-100-92798-5

Publié par la Commission canadienne de sûreté nucléaire (CCSN)
Numéro de catalogue de la CCSN : INFO-0792

Rapport préparé pour la CCSN par ECOMETRIX Incorporated, en collaboration avec RWDI Air Inc. (RSP-0247), mars 2009.

La reproduction d'extraits du présent document à des fins personnelles est autorisée à condition que la source soit indiquée en entier. Toutefois, sa reproduction en tout ou en partie à des fins commerciales ou de redistribution nécessite l'obtention préalable d'une autorisation écrite de la Commission canadienne de sûreté nucléaire.

Also available in English under the title: *Investigation of the Environmental Fate of Tritium in the Atmosphere*

Disponibilité du document
Les personnes intéressées peuvent consulter le document sur le site Web de la CCSN à suretenucleaire.gc.ca, ou en commander des exemplaires, en français ou en anglais, en communiquant avec la :

Commission canadienne de sûreté nucléaire
280, rue Slater
C.P. 1046, succursale B
Ottawa (Ontario) K1P 5S9
CANADA

Téléphone : 613-995-5894 ou 1-800-668-5284 (Canada seulement)
Télécopieur : 613-995-5086
Courriel : info@cnsc-ccsn.gc.ca
Site Web : suretenucleaire.gc.ca

Images de la page couverture
Les images de la page couverture illustrent le cycle du tritium dans l'atmosphère. Le tritium est rejeté par la cheminée et se disperse dans l'air. La pluie ou l'échange de vapeur contribuent à son dépôt sur la végétation et le sol (lessivage). Ensuite, les plantes et le sol peuvent rejeter à leur tour le tritium dans l'atmosphère.

TABLE DES MATIÈRES

RÉSUMÉ **1**

1.0 INTRODUCTION **3**

2.0 SOURCES ET FORMES CHIMIQUES DU TRITIUM **5**
2.1 Formes chimiques 5
2.2 Teneur isotopique naturelle 5
2.3 Sources naturelles 6
2.4 Sources anthropiques 8
2.4.1 Détonation thermonucléaire lors d'essais d'armes nucléaires 9
2.4.2 Réacteurs nucléaires 12
2.4.2.1 Réacteurs à eau sous pression (REP) 14
2.4.2.2 Réacteurs à eau bouillante (REB) 17
2.4.2.3 Réacteurs à eau lourde (REL) 18
2.4.2.4 Réacteurs refroidis au gaz (RRG) 20
2.4.2.5 Rejets dans l'air de tritium émis par les réacteurs 20
2.4.2.6 Rejets liquides de tritium émis par les réacteurs 20
2.4.2.7 Réacteurs à fusion thermonucléaire contrôlée (fusion) 21
2.4.2.8 Influence du circuit d'eau de refroidissement sur les rejets de tritium 21
2.4.3 Usines de retraitement du combustible 22
2.4.4 Installations de production de tritium 23
2.4.5 Produits de consommation 24

3.0 COMPORTEMENT PHYSIQUE ET CHIMIQUE DU TRITIUM DANS L'ATMOSPHÈRE **25**
3.1 Comportement physique du tritium 25
3.1.1 Désintégration radioactive 25
3.1.2 Autres propriétés physiques 25
3.1.3 Mobilité dans l'environnement 28
3.2 Transformations chimiques du tritium 32
3.2.1 Transformation du tritium du HT en HTO 32
3.2.2 Oxydation du sol par le CH_4 tritié 35
3.3 Comportement du tritium dans les panaches ou rejets atmosphériques 36
3.3.1 Formes du tritium 36
3.3.2 Caractéristiques des rejets de tritium par les installations nucléaires 36
3.3.3 Dispersion des panaches de tritium 37
3.3.3.1 Processus de dispersion normale 37
3.3.3.2 Effets de la topographie 39
3.3.3.3 Élévation du panache 40
3.3.3.4 Sillage aérodynamique aux cheminées et aux bâtiments 41
3.3.3.5 Fumigation du littoral 43

3.3.4 Dépôts secs et humides 43
3.3.5 Modèles de dispersion de future génération 45
3.4 Impact des changements climatiques sur la dispersion du tritium 45

4.0 COMPORTEMENT DYNAMIQUE DU TRITIUM DANS LE CYCLE DE L'EAU 48
4.1 Répartition du tritium de l'air dans le sol et l'eau de surface 48
4.1.1 Répartition du tritium de l'air vers l'eau du sol 49
4.1.2 Répartition du tritium de l'air dans l'eau de surface 52
4.2 Transport du tritium de l'eau du sol vers les eaux souterraines 54
4.3 Comportement du tritium dans les panaches lacustres et fluviaux 58

5.0 COMPORTEMENT PRÉVU ET OBSERVÉ DU TRITIUM DANS L'ENVIRONNEMENT AUX SITES DE REJET 61
5.1 Fabricants de sources autoluminescentes au tritium 61
5.1.1 SRB Technologies Limited 61
5.1.2 Shield Source Incorporated 74
5.2 Centrales nucléaires 78
5.2.1 Pickering (PN) 78
5.2.2. Darlington (DN) 82
5.2.3 Bruce (BN) 85
5.3 Examen du rendement des modèles 89
5.3.1 Air 89
5.3.2 Eau du sol 90
5.3.3 Eau des étangs 90
5.3.4 Eaux souterraines 91

6.0 CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS 92
6.1 Conclusions générales 92
6.2 Recommandations 92

7.0 RÉFÉRENCES 93

LISTE DES TABLEAUX

2.1 Répartition du tritium naturel (Begemann, 1963) 6
2.2 Taux de production de tritium estimés et rejets dans l'effluent pour différents types de réacteurs 14
2.3 Rejets de tritium par MW(e)a pour les REL canadiens 19
3.1 Masse atomique des différents isotopes de l'hydrogène contribuant à la séparation isotopique dans l'environnement 26
3.2 Propriétés thermodynamiques des oxydes d'isotopes de l'hydrogène 27
3.3 Valeurs par défaut pour le P_{11a}, transfert du HT au HTO dans l'air (sans unité) 33
3.4 Humidité absolue, moyenne de Ha ($L \cdot m^{-3}$) pour différentes saisons aux stations proches des installations CANDU canadiennes 35
3.5 Paramètres de cheminée et de bâtiment pertinents pour la dispersion atmosphérique du tritium sur les sites des réacteurs canadiens 42
4.1 Valeur du FR_{es} mesurée à la centrale de Pickering 50
4.2 Valeur du FR_{es} mesurée dans trois sites de réacteurs (AIEA, 2003) 50
4.3 Humidité absolue régionale et transfert du tritium de l'air vers l'eau interstitielle du sol 51
4.4 Données sur les précipitations et la surveillance de l'air pertinentes pour le facteur de transfert de l'air vers les étangs 54
4.5 Modèle simple de dilution aquatique en fonction de la distance (panache local) superposé à la concentration de fond en circulation dans le lac Ontario 60
5.1 Tritium atmosphérique modélisé et mesuré à l'installation de SRBT 65
5.2 Tritium modélisé et mesuré dans l'eau du sol à l'installation de SRBT 66
5.3 Tritium dans le ruissellement des toits, l'égouttement des cheminées et l'eau stagnante près des cheminées durant les précipitations à l'installation de SRBT ... 67
5.4 Tritium modélisé dans l'eau du sol à l'emplacement des puits de l'installation de SRBT au cours des années précédentes 67
5.5 Tritium modélisé et mesuré dans les eaux souterraines des puits de surveillance de l'installation de SRBT 68
5.6 Tritium modélisé et mesuré dans l'air sur le site de SSI en 2007 75
5.7 Tritium modélisé et mesuré dans les étangs sur le site de SSI en 2007 76
5.8 Tritium modélisé et mesuré dans l'air à l'installation de Pickering, 2007 80
5.9 Tritium modélisé dans l'eau du sol comparativement au tritium mesuré dans l'eau de pluie à l'installation de Pickering, 2007 80
5.10 Tritium modélisé et tritium mesuré dans l'air sur le site de Darlington, 2007 83
5.11 Tritium modélisé dans l'eau du sol comparativement au tritium mesuré dans l'eau de pluie sur le site de Darlington, 2007 84
5.12 Tritium modélisé et mesuré dans l'air sur le site de Bruce, 2006 87
5.13 Tritium modélisé dans l'eau du sol compararativement au tritium mesuré dans l'eau de pluie sur le site de Bruce, 2006 87

LISTE DES FIGURES

2.1 Origine et répartition du tritium dans le cycle de l'eau 7
2.2 Propriétés de l'atmosphère normale illustrant la variation de l'altitude de la tropopause en fonction de la latitude 11
2.3 Principales réactions nucléaires qui génèrent du tritium dans les réacteurs 13
2.4 Procédés de production du tritium 16
2.5 Fission ternaire du ^{235}U dans le combustible du réacteur 17
3.1 Modèle conceptuel illustrant le cycle de l'eau 29
3.2 Illustration des processus de dispersion du panache atmosphérique 40
3.3 Processus d'intégration du tritium dans l'environnement 44
3.4 Moyenne des précipitations pour l'hiver et l'été – 2080 à 2099 46
4.1 Modèle de transfert environnemental 49
4.2 Schéma d'un circuit d'écoulement des eaux souterraines 55
4.3 Changements en fonction du temps dans le profil de la concentration de tritium dans les eaux souterraines 58
5.1 Lieux d'échantillonnage de l'air sur le site de SRBT 69
5.2 Tritium modélisé en fonction du tritium mesuré dans l'air à l'installation de SRBT, 2006 70
5.3 Lieux d'échantillonnage de l'eau du sol et des eaux souterraines à l'installation de SRBT 71
5.4 Concentrations du tritium dans l'eau du sol et dans les eaux souterraines à l'emplacement MW07-21 sur le site de SRBT 72
5.5 Tritium modélisé en fonction du tritium mesuré dans les puits de SRBT, en 2007 73
5.6 Tritium modélisé/mesuré dans l'air sur le site de SSI – Données de 2007 76
5.7 Rapport de l'air modélisé à l'air mesuré en fonction de la distance sur le site de SSI – Données de 2007 77
5.8 Tritium modélisé/mesuré dans les étangs sur le site de SSI en 2007 78
5.9 Tritium modélisé en fonction du tritium mesuré dans l'air à l'installation de Pickering, 2007 81
5.10 Tritium modélisé dans l'eau du sol en fonction du tritium mesuré dans l'eau de pluie à l'installation de Pickering, 2007 82
5.11 Tritium modélisé en fonction du tritium mesuré dans l'air sur le site de Darlington, 2007 84
5.12 Tritium modélisé dans l'eau du sol en fonction du tritium mesuré dans l'eau de pluie sur le site de Darlington, 2007 85
5.13 Tritium modélisé en fonction du tritium mesuré dans l'air sur le site de Bruce, 2006 88
5.14 Tritium modélisé dans l'eau du sol en fonction du tritium mesuré dans l'eau de pluie sur le site de Bruce, 2006 89

RÉSUMÉ

En janvier 2007, le tribunal de la Commission canadienne de sûreté nucléaire (CCSN) a ordonné au personnel de la CCSN d'entreprendre des recherches sur les rejets de tritium au Canada. Le personnel de la CCSN a donc entrepris un projet d'« Études sur le tritium » prévoyant plusieurs activités de recherche et de compilation d'information qui devraient se poursuivre jusqu'en 2010. L'objectif de ce projet est de compléter l'information disponible pour guider la surveillance réglementaire de la transformation du tritium et des rejets de cette substance au Canada. Le document Étude sur le devenir environnemental du tritium dans l'atmosphère *s'inscrit dans ce projet. Il a été préparé pour la CCSN par EcoMetrix Incorporated, en collaboration avec RWDI Air Inc.*

Ce rapport examine la documentation sur le devenir environnemental et le comportement du tritium dans l'atmosphère, y compris le transfert du tritium et son comportement dans le milieu hydrologique. Il commence par une description des différentes sources anthropiques et naturelles de tritium, des formes chimiques du tritium et de son comportement physique et chimique dans l'atmosphère. Le rapport décrit également la dynamique du tritium dans le cycle hydrologique, y compris son transfert de l'air vers le sol et les eaux de surface, du sol vers les eaux souterraines et le comportement du tritium dans les lacs et rivières (milieux récepteurs).

Les méthodes de modélisation utilisées pour expliquer la dispersion atmosphérique du tritium provenant de sources ponctuelles sont décrites, ainsi que la répartition du tritium (HTO) allant de l'air à l'eau du sol, à l'eau de surface et aux eaux souterraines. La modélisation a été réalisée pour un certain nombre d'installations autorisées qui rejettent du tritium, et les prévisions des modèles ont été comparées aux concentrations mesurées dans l'environnement. À la lumière de ces comparaisons, notre capacité de prédire les concentrations environnementales, d'après les connaissances actuelles du comportement du tritium, est discutée et les facteurs contribuant aux incertitudes du modèle sont identifiés.

Le modèle de dispersion gaussien à moyenne zone, tel que décrit dans la norme de l'Association canadienne de normalisation (CSA) N288.1-08, a été appliqué pour un certain nombre de centrales nucléaires et installations de fabrication de sources autoluminescentes au tritium. Dans tous les cas, le modèle était conservateur, avec une tendance à la surestimation de la concentration du tritium dans l'air. Dans trois cas, les prévisions étaient légèrement supérieures aux valeurs annuelles moyennes mesurées (soit 20 à 83 % plus élevées, en moyenne généralement d'un facteur de 2). Dans deux cas, les concentrations de tritium étaient surestimées d'un facteur de 2 ou 3 fois en moyenne. Les valeurs mesurées dans l'air sont incertaines, en raison des différences non résolues entre les échantillonneurs d'air actifs et passifs.

Le tritium estimé par le modèle dans l'eau du sol a été comparé soit à la mesure d'eau dans le sol ou d'eau de pluie (étant donné que l'eau dans le sol provient de la pluie ou qu'elle y est semblable). Dans trois cas, les prévisions étaient légèrement supérieures aux valeurs mesurées (35 à 62 % en moyenne, soit d'un facteur de 2). Dans un cas, le tritium dans l'eau du sol était suffisamment surestimée et correspondait à une valeur deux fois plus élevée en moyenne. Lorsque les concentrations dans l'air changent rapidement, il a été constaté que celles de l'eau dans le sol accusent parfois un certain retard.

Le tritium estimé par le modèle dans les eaux souterraines a été comparé aux concentrations mesurées dans les eaux souterraines d'une installation et était 52 % plus élevé en moyenne (généralement d'un facteur de 3). Il a été remarqué que les puits souterrains pouvaient être affectés par l'accumulation de neige à proximité, ou par un écoulement d'eaux souterraines horizontal, ainsi que par des infiltrations verticales, et qu'ils sont assujettis à des variations locales dans les conditions souterraines. Les retards accusés par les eaux souterraines par rapport à l'eau dans le sol sont basés sur la profondeur du puits et sur le temps de déplacement vertical.

Le tritium estimé par le modèle dans les eaux stagnantes a été comparé aux mesures prises dans les eaux stagnantes d'une installation et était 28 % plus élevé en moyenne (généralement d'un facteur de 2). On a remarqué que les étangs et les marais peuvent être assujettis à des arrivées d'eau de sol ou d'eaux souterraines et qu'ils pourraient ne pas être en équilibre avec les concentrations locales actuelles dans l'air.

Les recommandations comprennent la réalisation d'études visant à résoudre les problèmes souvent associés aux écarts observés entre les résultats des échantillonneurs d'air passifs et actifs, et la réalisation d'études en champ proche portant sur l'air, l'eau dans le sol et les eaux souterraines, afin de mieux comprendre les retards qui surviennent dans les changements de concentrations dans l'eau du sol et dans les eaux souterraines, ainsi que l'importance des effets se produisant en amont.

1.0 INTRODUCTION

Les concentrations élevées de tritium dans l'environnement qui sont associées à la production, à la manutention et à la gestion de l'isotope radioactif de l'hydrogène dans les installations nucléaires constituent une préoccupation majeure pour le public. Selon la *Loi sur la sûreté et la réglementation nucléaires* (LSRN), la Commission canadienne de sûreté nucléaire (CCSN) a pour mission d'informer objectivement le public – sur les plans scientifique ou technique ou en ce qui concerne la réglementation du domaine de l'énergie nucléaire – concernant ces activités et leurs conséquences pour la santé et la sécurité des personnes et pour l'environnement. Elle a également pour mandat de réglementer le développement, la production, la possession, le transport et l'utilisation des substances nucléaires.

En janvier 2007, le tribunal de la Commission a ordonné au personnel de la CCSN d'entreprendre des travaux de recherche sur les rejets de tritium au Canada. Le personnel de la CCSN a donc entrepris un projet d'« Études sur le tritium » prévoyant plusieurs activités de recherche et de compilation d'information qui devraient se poursuivre jusqu'en 2010 (on trouvera un feuillet de documentation à ce propos au www.suretenucleaire.gc.ca). L'objectif de ce projet est de compléter l'information disponible pour guider la surveillance réglementaire de la transformation du tritium et de ses rejets au Canada. Un examen des documents disponibles sur le devenir environnemental du tritium dans l'atmosphère, dans le contexte des rejets contrôlés émis par les installations autorisées, est contenu dans l'activité 5.5 du projet des Études sur le tritium.

La CCSN a demandé à EcoMetrix Incorporated (EcoMetrix), en collaboration avec RWDI Air Inc. (RWDI), de mener la présente étude sur le devenir environnemental du tritium dans l'atmosphère. Le rapport décrit les différentes sources d'origine artificielles et naturelles de tritium dans l'atmosphère, les formes chimiques et le comportement physique et chimique du tritium dans l'atmosphère. Cela comprend un examen des processus de dispersion atmosphérique et des méthodes de modélisation visant à estimer la dispersion dans le contexte de l'évaluation de la dose reçue par le public. Le rapport décrit également le comportement dynamique du tritium dans le cycle de l'eau, y compris le transfert du tritium de l'air vers l'eau du sol et les eaux de surface, le transport du tritium de l'eau du sol vers les eaux souterraines et le comportement du tritium dans les milieux récepteurs, soit les lacs et les rivières.

En plus de cet examen de la documentation sur le comportement du tritium dans l'atmosphère et dans les milieux hydrologiques, ce rapport présente les données de surveillance du tritium disponibles pour un certain nombre d'installations nucléaires autorisées qui rejettent du tritium. De même, il examine les prévisions des modèles des concentrations environnementales du tritium et les compare à celles estimées et observées. Selon ces comparaisons, notre capacité à prédire les concentrations environnementales d'après les connaissances dont nous disposons actuellement est évaluée et les facteurs qui contribuent aux incertitudes des modèles sont identifiés.

Après l'introduction, le rapport est organisé comme suit : la Section 2.0 décrit les diverses sources de tritium, la Section 3.0 décrit le comportement physique et chimique du tritium dans l'atmosphère, la Section 4.0 décrit le comportement du tritium dans le cycle de l'eau et la Section 5.0 compare le comportement prévu et observé à différents sites de rejet. Les références mentionnées sont énumérées à la Section 6.0.

2.0 SOURCES ET FORMES CHIMIQUES DU TRITIUM

La présente section donne un aperçu des sources et des formes chimiques du tritium dans l'atmosphère. Des sources naturelles et d'origine humaine sont décrites.

2.1 Formes chimiques

Le tritium est un isotope rare de l'hydrogène (H) et il est, en fait, la seule forme radioactive de cet élément naturel. Alors que le noyau de l'hydrogène ordinaire n'est formé que d'un seul proton, celui du tritium comporte aussi deux neutrons (ANL, 2005). Ainsi, le tritium est deux fois plus lourd que l'hydrogène ordinaire. Le tritium est représenté par le symbole T, afin de le distinguer des autres isotopes de l'hydrogène, plus légers.

En dépit de leur différence de masse, le tritium et l'hydrogène se présentent sous les mêmes formes chimiques. Les formes les plus importantes, du point de vue du comportement atmosphérique du tritium, sont l'hydrogène gazeux tritié (HT) et l'eau tritiée (HTO). Ces formes tritiées se comportent chimiquement comme l'hydrogène gazeux (H_2) et l'eau (H_2O). Lorsque le tritium est intégré à des molécules d'hydrocarbures dans un organisme, on l'appelle tritium lié aux composés organiques (OBT). Comme l'OBT ne participe pas aux processus atmosphériques, il ne fait pas l'objet de la présente étude. Le méthane tritié (CH_3T) représente une faible fraction du tritium atmosphérique.

2.2 Teneur isotopique naturelle

L'hydrogène est l'élément le plus abondant de l'Univers et représente environ 90 % en nombre d'atomes, surtout dans les étoiles et les planètes gazeuses. L'hydrogène ordinaire (^1H) représente plus de 99,985 % de tout l'hydrogène naturellement présent, alors que le deutérium (^2H) représente environ 0,015 %. À titre de comparaison, le tritium (^3H) représente seulement 10^{-16} % de l'hydrogène naturellement présent (Gross *et coll.*, 1951).

On estime que l'hydrogène atmosphérique naturel contient environ 4×10^{-17} atomes de tritium pour un atome d'hydrogène, alors que l'hydrogène dans les eaux de surface naturelles contient environ 10^{-18} atomes de tritium par atome d'hydrogène, conformément à certaines études (Bibron, 1963; Faltings et Harteck, 1950; Fireman et Rowland, 1961; Grosse *et coll.*, 1951, 1954; Harteck, 1954; Harteck et Faltings, 1950). Ainsi, l'« unité de tritium » (u.t.) correspond à une concentration d'un atome de tritium pour 10^{18} atomes d'hydrogène (Gross *et coll.*, 1951). Aujourd'hui, les concentrations de tritium sont beaucoup plus souvent signalées en unités d'activité (Bq par litre d'eau), où un « u.t. » est équivalent à 0,118 Bq/L (ICRU, 1963).

Les concentrations de tritium présentes dans l'atmosphère (rapport T/H) sont environ 10^3 à 10^4 fois élevées que dans l'eau de pluie provenant des précipitations, bien que les quantités d'hydrogène gazeux dans l'atmosphère soient 10^4 fois inférieures à la quantité moyenne de vapeur d'eau (Begemann, 1962; Bibron, 1963; Gross *et coll.*, 1954; Harteck, 1954; Harteck et Faltings, 1950). Les concentrations globales correspondent à environ 0,12 % du tritium naturel sous forme d'hydrogène gazeux, à environ 0,1 % sous forme

de vapeur d'eau, et à 99,78 % contenu dans l'hydrosphère, principalement dans les océans (Begemann, 1962; Jacobs, 1968). De l'inventaire total du tritium naturel, presque 99 % se trouve dans les océans, et moins de 1 % se trouve dans l'atmosphère et dans les eaux souterraines (Tableau 2.1). Dans des conditions naturelles non perturbées, la concentration de tritium dans les précipitations est probablement d'environ 5 u.t., ce qui équivaut à une activité spécifique d'environ 0,6 Bq/L (Roether, 1967). À titre de comparaison, le tritium est naturellement présent dans les eaux de surface à des concentrations d'environ 0,37 à 1,11 Bq/L (ANL, 2005).

2.3 Sources naturelles

Le tritium est généré à la fois par des processus naturels et artificiels (Figure 2.1). Il est produit principalement par l'interaction entre les protons et les neutrons du rayonnement cosmique avec des gaz (y compris l'azote, l'oxygène et l'argon) dans la haute atmosphère (Casaletto *et coll.*, 1962; Dorfman et Hemmer, 1954; Eisenbud et Gesell, 1997; Suess, 1958; Thompson et Schaeffer, 1955; UN, ILO et WHO, 1983; Yang et Gevantman, 1960, 1964; Zerriffi, 1996). Environ les deux tiers du tritium naturel est produit dans la stratosphère, avec des taux de production beaucoup plus bas dans l'hydrosphère et dans la lithosphère à la surface de la Terre (UN, ILO et WHO, 1983). En outre, une certaine quantité de tritium peut être générée dans le milieu extraterrestre et pénétrer dans l'atmosphère avec les rayons cosmiques ou les vents solaires (UN, ILO et WHO, 1983). La majeure partie du tritium naturel se trouve dans l'environnement sous forme d'eau tritiée (généralement appelée HTO), à l'état de liquide ou de vapeur.

Tableau 2.1 : Répartition du tritium naturel (Begemann, 1963)

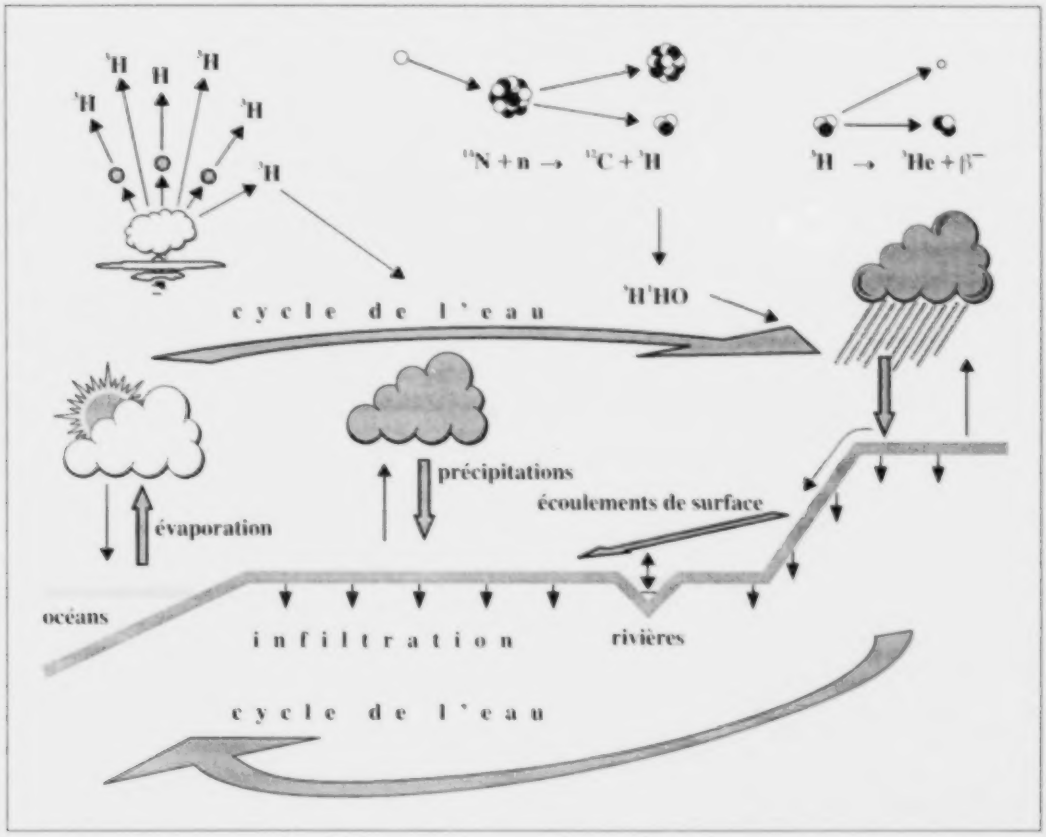
Couche de l'atmosphère	Répartition du tritium en pourcentage (%)
Hydrosphère	~90
Troposphère	
Vapeur d'eau	0,1
Hydrogène moléculaire	0,02 à 0,2
Méthane	< 0,04
Stratosphère	
Eau	~10
Hydrogène moléculaire	0,004 à 0,007

Les réactions atmosphériques les plus importantes comprennent les interactions entre les neutrons rapides (> 4 MeV) et l'azote atmosphérique (Young et Foster, 1972), tel que décrit par l'équation suivante :

$$^{14}_{7}N + {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{12}_{6}C + {}^{3}_{1}T \qquad \text{Équation 2.1}$$

La production de tritium naturel par unité de temps et par unité de surface à la surface de la Terre est estimée à un taux d'environ 0,1 à 1,3 atomes de tritium/cm^2/s, les valeurs les plus probables se situant autour de 0,5 à 1,0 atome de tritium/cm^2/s (Begemann, 1958, 1962; Begemann et Libby, 1957; Bolin, 1958; Craig, 1957; Craig et Lal, 1961; Currie, 1959; Currie *et coll.*, 1956; Flamm *et coll.*, 1962; Hagemann *et coll.*, 1959; Jacobs, 1968; Libby, 1952; Newkirk, 1963; UN, 1960; UNSCEAR, 1977; von Buttlar, 1963; von Buttlar et Libby, 1955; Wilson et Ferguson, 1960; Zahn *et coll.*, 1998).

Figure 2.1 : Origine et répartition du tritium dans le cycle de l'eau. Le remplacement du tritium est très rapide, sauf lorsqu'il se fixe dans la glace des glaciers ou dans les eaux souterraines, ou lorsqu'il est intégré à des organismes sous forme de tritium lié à des composés organiques (OBT) (www.iaea.org/programmes/ripc/ih/volumes/vol_one/cht_i_08.pdf).



Une petite fraction du tritium peut également provenir de la stratosphère (sources d'origine extraterrestre, comme les éruptions solaires et les étoiles), bien que l'irradiation par des neutrons rapides soit la principale source, produisant environ dix fois plus de tritium que l'autre (Fireman, 1953; Flamm *et coll.*, 1962; Lal et Peters, 1967). Par exemple, on estime que les éruptions solaires génèrent en moyenne 0,1 atome de tritium/cm^2/s à la surface de la Terre pendant la durée du cycle solaire (Flamm *et coll.*, 1962).

Des quantités « traces » de tritium peuvent également se former suite à des réactions de neutron lent avec le ^{6}Li dans les océans et la lithosphère, l'irradiation du deutérium par des neutrons et des réactions de neutrons produites pendant la fission spontanée dans les matières terrestres (Jacobs, 1968; UNSCEAR, 1977). De tels procédés donnent lieu à des taux de production de tritium de 10^{-3} atome/cm^2/s dans la lithosphère et de 10^{-6} atome de tritium/cm^2/s dans l'hydrosphère (Fireman, 1953; Kaufman et Libby, 1954; UN, ILO et WHO, 1983). On s'attend à ce que les changements dans l'écosystème générés par certains processus comme les changements climatiques pourraient avoir une incidence sur les taux naturels de production de tritium et sur son devenir dans l'atmosphère, l'hydrosphère et la lithosphère.

La production de tritium par des processus naturels donne lieu à un inventaire global à l'équilibre d'environ 2,65 kg, ce qui correspond à environ 9,6 x 10^5 TBq (NCRP, 1979; Zerriffi, 1996). En raison du fait que la période radioactive du tritium est relativement courte, soit 12,32 années, le tritium produit de cette manière ne s'accumule pas sur l'échelle des temps géologiques, ce qui explique son abondance naturelle négligeable (Lucas et Unterweger, 2000).

2.4 Sources anthropiques

En plus des sources naturelles, le tritium peut également provenir de différentes sources anthropiques, qui constituent la proportion dominante de l'inventaire global de tritium. Les sources anthropiques de tritium comprennent les retombées des essais d'armes nucléaires, les réacteurs nucléaires, les réacteurs de fusion futurs, les usines de retraitement du combustible, les installations de production d'eau lourde et la production commerciale à des fins de diagnostics médicaux, de produits radiopharmaceutiques, de peintures luminescentes, de dispositifs d'éclairage de panneau, d'avions autolumineux, de feux de pistes d'aéroport, de cadrans lumineux, de jauges et de montres, etc. (Galeriu *et coll.*, 2005; Weiss *et coll.*, 1979a; UN, ILO et WHO, 1983). Les utilisations commerciales du tritium ne représentent qu'une petite fraction du tritium utilisé partout dans le monde. En fait, l'utilisation principale du tritium est d'accroître le rendement des armes thermonucléaires ou à fusion et d'accroître l'efficacité de l'utilisation des matières explosives nucléaires (Kalinowski et Colschen, 1995).

2.4.1 Détonation thermonucléaire lors d'essais d'armes nucléaires

Des essais d'armes nucléaires sont réalisés dans l'atmosphère depuis 1945, ce qui a produit du tritium en quantité dépassant l'activité naturelle globale, particulièrement de 1954 à 1958 et de 1961 à 1962, alors que de nombreux essais étaient réalisés (UN, ILO et WHO, 1983). L'activité du tritium associée aux essais nucléaires atmosphériques peut être estimée à partir des rendements de fission et de fusion des essais d'armes ou des mesures effectuées dans l'environnement. Par exemple, l'activité du tritium produit par unité de rendement dépend des caractéristiques du dispositif, ainsi que des caractéristiques du site de détonation. De plus, la production de tritium suite aux réactions de fusion est de beaucoup supérieure à celle suite aux réactions de fission (NCRP, 1979).

Le tritium est un produit de fission des essais d'armes nucléaires et des réacteurs de puissance, avec un rendement d'environ 0,01 % (Albenesius, 1959; Albenesius et Ondrejcin, 1960; ANL, 2005; Haney *et coll.*, 1962; Horrocks, 1964; Jacobs, 1968; Serot *et coll.*, 2005; Sloth *et coll.*, 1962; Watson, 1961; Wegner, 1961). Ceci représente environ un atome de tritium par 10 000 fissions. Il subsiste environ 0,7 à 5,0 kg de tritium par explosion équivalente à une mégatonne suite à la réaction de fusion d'une bombe deutérium-tritium dans une détonation thermonucléaire pure, avec un rendement additionnel pouvant atteindre 0,15 kg de tritium imputable à l'irradiation par les neutrons de l'azote (tel qu'indiqué dans l'équation 2.1) (Eriksson, 1965; Leipunsky, 1960; Martell, 1959, 1963; Miskel, 1964).

Le rendement total de tritium et le rendement du tritium de fission ont été estimés pour chaque essai atmosphérique signalé pendant la période entre 1945 et 1978 (Bennett, 1978). Les données compilées pendant cette période comprennent les rejets de tritium associés à 422 essais nucléaires dans l'atmosphère, avec des rendements cumulatifs de 217 mégatonnes pour la fission et de 328 mégatonnes pour la fusion. Cela correspondait à des rendements estimés de $2{,}6 \times 10^{13}$ Bq de tritium par mégatonne pour des explosions de fission et de $7{,}4 \times 10^{17}$ Bq de tritium par mégatonne pour la fusion, et une activité totale du tritium de $2{,}4 \times 10^{20}$ Bq pour les essais atmosphériques (basés sur le tritium produit à partir de réactions de fusion) (Miskel, 1973).

Le tritium produit par une explosion nucléaire est presque entièrement converti en eau tritiée (HTO), qui se mélange ensuite à l'eau de l'environnement, tel que décrit par l'équation suivante (UN, ILO et WHO, 1983) :

$$HT + H_2O \rightleftharpoons HTO + H_2 \qquad \text{Équation 2.2}$$

La majeure partie du tritium émis par des bombes, qui a été oxydé pour former de l'eau, est retirée de la troposphère par précipitation, bien que le rapport tritium-hydrogène pour l'hydrogène atmosphérique gazeux et le méthane est beaucoup plus élevé (Jacobs, 1968; Martell, 1959). Par conséquent, les détonations thermonucléaires du passé ont donné lieu à des augmentations aiguës des concentrations de tritium allant jusqu'à plusieurs ordres de grandeur des concentrations naturelles dans la pluie, avec des augmentations temporaires du tritium jusqu'à 1 000 fois dans les précipitations dans l'hémisphère Nord suite aux essais

d'armes au début des années 1960 (Begemann et Libby, 1957; von Buttlar et Libby, 1955). Depuis 1963, les valeurs extrêmes temporaires de la concentration de tritium ont diminué pour se stabiliser aux valeurs naturelles en hiver, et à des valeurs qui sont à peu près le double des concentrations naturelles en été.

À la lumière de mesures du tritium dans les précipitations effectuées aux stations du réseau de l'AIEA, la production de tritium totale de $1,7 \times 10^{20}$ Bq associée aux essais d'armes a été estimée (Schell *et coll.*, 1974). Des estimations semblables du tritium dégagé par les armes, allant de $1,2 \times 10^{20}$ Bq (dans les océans seulement) à $2,4 \times 10^{20}$ Bq, ont été réalisées à l'aide de mesures du tritium effectuées dans des profils verticaux dans les océans (Bowen et Roether, 1973; Mitchel, 1976; Ostlund et Fine, 1979; UNSCEAR, 1977). À la lumière de ces estimations, l'UNSCEAR (1977) a adopté une valeur de $1,7 \times 10^{20}$ Bq de tritium pour représenter la quantité de tritium dispersée dans le monde suite aux essais d'armes dans l'atmosphère jusqu'en 1976.

Lorsque du tritium est projeté dans la stratosphère, sa récupération par précipitation n'est pas aussi rapide que dans la troposphère (Stebbins, 1961). À titre de comparaison, les explosions de fusion souterraines produisent du tritium principalement sous forme d'eau tritiée qui se déplace ensuite avec les eaux souterraines (Stead, 1963).

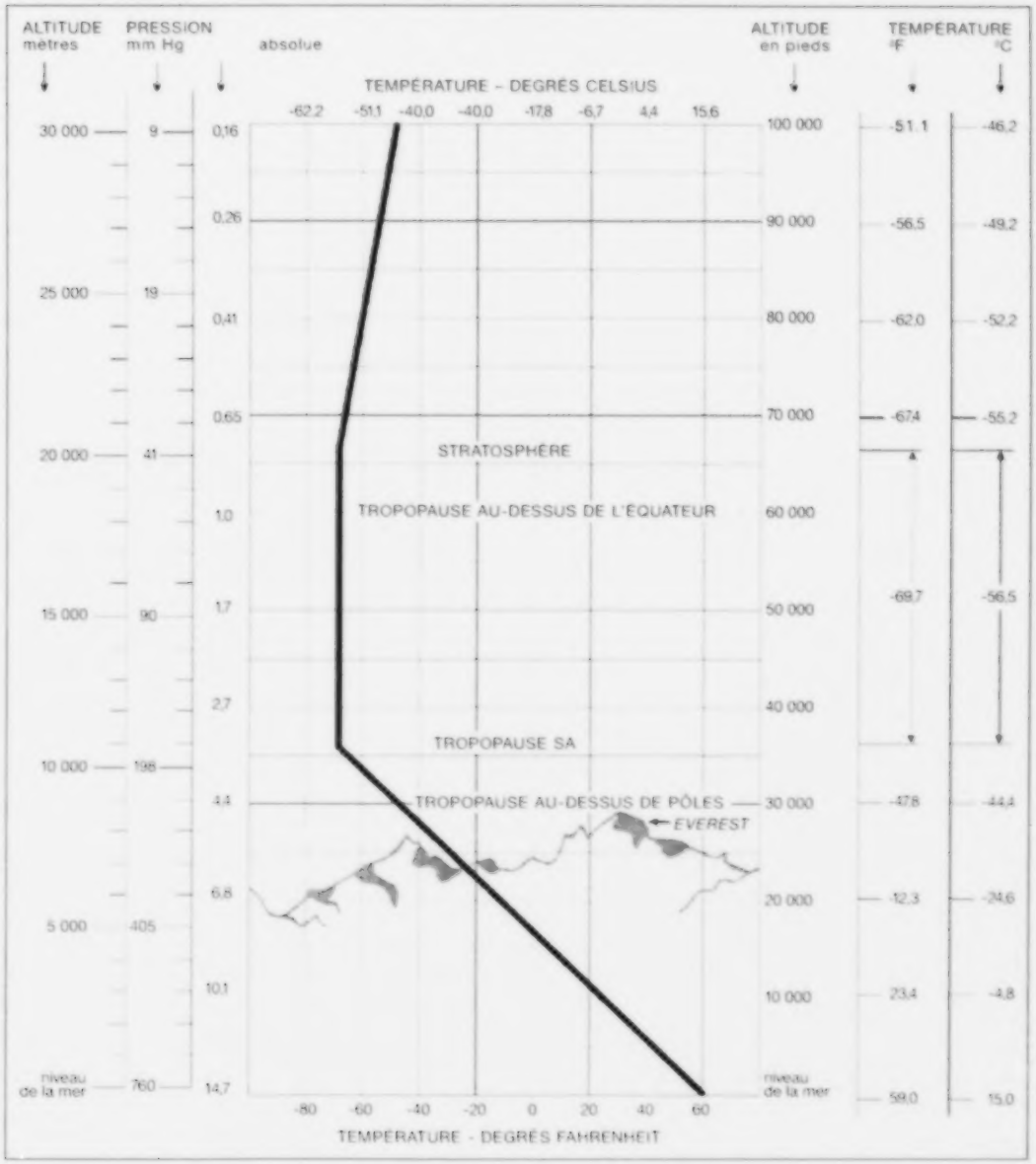
De façon générale, la répartition des débris radioactifs entre la stratosphère et la troposphère varie selon l'altitude du tir, la latitude et le rendement (Martell, 1963). Par exemple, les explosions thermonucléaires en haute altitude dans les régions tropicales libèrent du tritium directement dans la stratosphère, où les processus de mélange sont très lents (Bibron, 1965; Jacobs, 1968; Libby, 1958). À titre de comparaison, les détonations à basse altitude dans les régions tropicales ont donné lieu à l'entraînement d'une fraction substantielle de la vapeur d'eau dans l'atmosphère par le courant d'air ascendant qui est créé par l'explosion. La tropopause sert de piège à froid, ce qui empêche la majeure partie de la vapeur d'eau de pénétrer dans la stratosphère. Les particules de glace qui se forment à la tropopause retombent ensuite rapidement dans la troposphère.

Dans les régions polaires, la teneur en vapeur d'eau naturelle de l'air est relativement faible et, par conséquent, la majeure partie du tritium associé aux détonations dans les régions polaires pénètre dans la stratosphère, puis vers des latitudes inférieures avant de passer dans la troposphère. Par conséquent, on s'attend à ce que les changements dans la teneur en vapeur d'eau, la température de l'air (et la capacité correspondante des masses d'air à retenir l'eau), les cycles mondiaux des masses d'air, ainsi que tout changement ayant une incidence sur le cycle de l'eau, de façon générale, aient une incidence sur le devenir du tritium dans l'environnement. Par exemple, les changements climatiques (qui sont examinés plus en détail à la Section 1.5) ont le potentiel de modifier de façon mesurable le cycle du tritium localement et mondialement.

La répartition du tritium qui est produit par les détonations nucléaires est à peu près la même que pour le tritium naturel (Libby, 1963). Le HTO est la forme prédominante du tritium, étant donné qu'il est produit rapidement dans des conditions d'oxydation propres au globe de feu

thermonucléaire (Bibron, 1963; Bishop *et coll.*, 1962). De plus, le milieu réducteur au centre du globe de feu donne lieu à la production d'hydrogène et de méthane fortement tritiés (Wolfgang, 1961).

Figure 2.2 : Propriétés de l'atmosphère normale illustrant la variation de l'altitude de la tropopause en fonction de la latitude (de Transports Canada, 2004)



Environ 20 % des rejets de radionucléides dans l'atmosphère durant une détonation à la surface du sol sont absorbés dans la stratosphère, alors qu'environ 80 % des rejets à la surface de l'eau se retrouvent dans la stratosphère (Bibron, 1965). Le tritium stratosphérique est dégagé lentement dans la troposphère (avec un temps de séjour moyen entre un peu plus d'un an et 10 ans dans la stratosphère), après quoi l'élimination du tritium sous forme de vapeur d'eau se produit beaucoup plus rapidement par lessivage rapide par la pluie (Barrett et Huebner, 1961; Begemann, 1962; Eriksson, 1965; Gat *et coll.*, 1962; Hagemann *et coll.*, 1959; Jacobs, 1968; Libby, 1958; Martell, 1963; Stebbins, 1961).

Le transport des masses d'air et des débris de la stratosphère vers la troposphère dépend de l'action de la diffusion turbulente causée par les courants horizontaux qui entraînent des changements saisonniers dans la teneur en tritium de la pluie (Bibron, 1965). Les courants jets extrêmement rapides, particulièrement dans les zones sous-tropicales, peuvent causer des échanges importants qui facilitent un mélange nord-sud assez rapide dans la stratosphère (Libby, 1958). Par conséquent, le tritium se mélange de manière plus homogène (Begemann, 1958). Les courants jets atteignent leur intensité maximale à la fin de l'hiver et au printemps, ce qui cause des changements saisonniers dans les retombées de tritium, avec des valeurs maximales se produisant dans les zones médianes au printemps et au début de l'été, alors que le tritium est lessivé de la stratosphère vers la troposphère (Libby, 1963; Taylor, 1964; Taylor *et coll.*, 1963). Plus particulièrement, on estime qu'environ la moitié du tritium provenant de la détonation d'armes thermonucléaires retombe dans la zone se trouvant entre 30° et 50° de latitude (Libby, 1963).

Suite à son entrée dans la troposphère, le mélange vertical devient plus prononcé, ce qui entraîne un nettoyage rapide par la pluie correspondant à un temps de séjour du tritium relativement court dans la troposphère (environ 21 à 40 jours) comparativement au temps de séjour de un à dix ans dans la stratosphère (Barrett et Huebner, 1960, 1961; Begemann et Libby, 1957; Bolin, 1964; Brown et Grummitt, 1956; Libby, 1958, 1963; Walton *et coll.*, 1962). Le transport du tritium peut également se produire par diffusion turbulente, à un taux qui dépend du mouvement de l'air, du taux d'évaporation des plans d'eau, ainsi que de l'humidité relative de l'air (Engelke et Hemis, 1962; Eriksson, 1965).

2.4.2 Réacteurs nucléaires

Le tritium est un sous-produit de nombreux processus survenant dans les réacteurs, tel qu'indiqué à la Figure 2.3, et dans les sections qui suivent. De façon générale, ces réactions peuvent être classées en production de tritium par fission ternaire (ou fission du combustible du réacteur), et en réaction d'activation des neutrons avec les isotopes du lithium et du bore dissous dans le caloporteur primaire ou en contact avec ce dernier, ou encore avec le deutérium naturellement présent dans le caloporteur primaire (Estournel, 1962; UN, ILO et WHO, 1983).

L'importance relative de ces réactions dans la production de tritium dépend du type de réacteur et de sa conception. Aux fins du présent rapport, quatre conceptions de réacteurs sont examinées du point de vue de la production de tritium. Ceux-ci comprennent les réacteurs à eau sous pression (REP), les réacteurs à eau bouillante (REB), les réacteurs à eau lourde (REL) et les réacteurs refroidis au gaz (RRG). Les contributions relatives du tritium de chaque conception en ce qui a trait à la production de tritium et aux rejets de tritium dans les effluents sont résumées au Tableau 2.2.

Des renseignements additionnels en ce qui a trait au potentiel de production et de rejet de tritium seront disponibles dans un avenir rapproché pour les réacteurs thermonucléaires (ou de fusion), qui sont actuellement en cours de développement (ITER; www.iter.org/).

Figure 2.3 : Principales réactions nucléaires qui génèrent du tritium dans les réacteurs (tiré de UN, ILO et WHO, 1983)

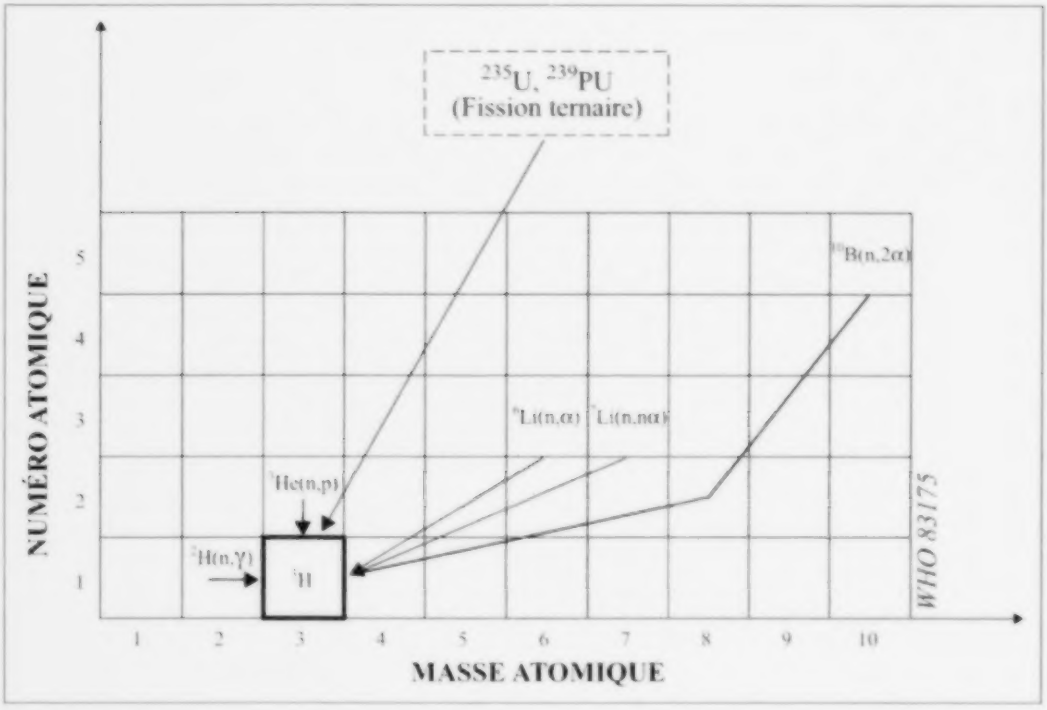


Tableau 2.2 : Taux de production de tritium estimés et rejets dans l'effluent pour différents types de réacteurs (10^{10} Bq par MW(e)a) (Gratwohl, 1973; Kouts et Long, 1973; Smith et Gilbert, 1973; Trevorrow *et coll.*, 1974; UNSCEAR, 1977)

Taux de production et rejets de tritium par [a] type de réacteur (10^{10} Bq par MW(e)a)								
	REP		REB		REL		RRG	
Source	Génération	Effluent	Génération	Effluent	Génération	Effluent	Génération	Effluent
Fission	75	< 0,7	75	< 0,7	55	< 0,6	75	< 0,7
Activation								
Deutérium	0,004	0,004	0,04	0,04	2 000	[b] 75		
Lithium	0,07	0,07					2	0,4
Bore	2,6	2,6		30	0			
Total arrondi	**80**	**3**	**110**	**0,5**	**2 000**	**75**	**80**	**1**

[a] *REP : réacteur à eau sous pression; REB : réacteur à eau bouillante; REL : réacteur à eau lourde; RRG : réacteur refroidi au gaz*

[b] *Dépend du temps d'irradiation et des fuites nettes d'eau lourde. Ces rejets par MW(e) sont typiques pour les réacteurs de type REL pendant la période de 1990 à 1994, selon UNSCEAR (2000), annexe C, fig. XVI. Cette valeur fluctue environ d'un ordre de grandeur.*

2.4.2.1 Réacteurs à eau sous pression (REP)

Dans les réacteurs à eau sous pression (REP), le tritium est produit principalement par capture neutronique par le bore 10 (^{10}B) dans le caloporteur primaire (eau), ce qui donne une production de 2,6 x 10^{10} Bq de tritium par MW(e)a (UN, ILO et WHO, 1983). De l'acide borique ou du « bore soluble » est ajouté au circuit caloporteur (CC) du REP comme substance soluble de contrôle de la réactivité, ce qui réduit la vitesse de fission dans le cœur du réacteur en absorbant des neutrons afin de contrôler la réactivité (Jacobs, 1968).

La capture neutronique par le ^{10}B produit un certain nombre de résultats, tel qu'indiqué dans les équations suivantes (Jones, 2007) :

$$^{10}_{5}B + {}^{10}_{5}B \rightarrow [^{11}_{5}B]^{*} \rightarrow {}^{7}_{3}Li + {}^{4}_{2}He \qquad \text{Équation 2.3}$$

$$^{10}_{5}B + {}^{1}_{0}n \rightarrow [^{11}_{5}B]^{*} \rightarrow {}^{3}_{1}H + 2 \cdot ({}^{4}_{2}He) \qquad \text{Équation 2.4}$$

La première équation (Équation 2.3) décrit la production de lithium sous forme d'hydroxyde de lithium (LiOH), qui est utilisé dans le contrôle du pH du caloporteur du réacteur REP (Locante et Malinowski, 1973). Le maintien de deux parties par million (ppm) d'hydroxyde de lithium dans le caloporteur du réacteur donne lieu à la formation d'environ 7 x 10^8 Bq de tritium par MW(e)a (UN, ILO et WHO, 1983). À titre de comparaison, l'Équation 2.4 illustre la production de tritium à partir du ^{10}B par capture neutronique.

La capture neutronique par le ^{7}Li (qui est généré par le processus illustré à l'Équation 2.3), est également une source peu importante de tritium (Jones, 2007), comme suit :

$$^{7}_{3}Li + {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{3}_{1}H + {}^{4}_{2}He + {}^{1}_{0}n \qquad \text{Équation 2.5}$$

En outre, des échangeurs de cations de lithium peuvent être utilisés pour épurer l'eau de refroidissement, ce qui peut entraîner une production élevée de tritium (Jacobs, 1968; AIEA/WHO, 2004a, 2004b). Dans le cas des neutrons thermiques et des neutrons lents, la production de tritium à partir du lithium provient de l'isotope ^{6}Li (tel qu'indiqué à la Figure 2.4). Dans le cas des neutrons rapides, le ^{7}Li joue le rôle principal, tel qu'indiqué dans la réaction de l'Équation 2.5 (Verzaux, 1952). Un changement dans les résines naturelles de LiOH qui deviennent des résines de ^{7}LiOH peut réduire la concentration de tritium dans le caloporteur primaire de deux ordres de grandeur (Lechnick, 1962).

Quatre-vingt-dix pour cent du tritium total dans le caloporteur du réacteur REP est produit dans le caloporteur par le contrôle de la réactivité avec de l'acide borique soluble. Le 10 % qui reste est produit par d'autres procédés, y compris la fission ternaire, les poisons consommables ^{10}B, la capture neutronique de ^{6}Li , et l'activation du deutérium ou du ^{3}He suite à l'irradiation par des neutrons thermiques dans le caloporteur du réacteur (Estournel, 1962; Jacobs, 1968; Sültenfuß, 2008). Par exemple, la Figure 2.4 illustre deux procédés nucléaires fondamentaux qui mènent à la production de tritium, et qui comprennent un procédé en réacteur et un procédé en accélérateur.

Le bore 10 est également présent avec le bore dans les assemblages de combustible du REP comme poison consommable ou absorbeur de neutrons afin de maintenir une réactivité constante relative pendant la durée de vie du réacteur et pour éviter l'utilisation de barres de commande, qui diminuent localement le flux de neutrons (US-DOE, 1993). La production annuelle de tritium comme produit de fission dans les barres de combustible d'un REP est de l'ordre de 6 à 9 x 10^{11} Bq par MW(e)a (NCRP, 1979).

De façon générale, les rejets de tritium dans l'environnement par les REP dépendent des pratiques de gestion des déchets, ainsi que des matériaux utilisés dans le réacteur (UN, ILO et WHO, 1983; AIEA/WHO, 2004a, 2004b). Par exemple, il peut y avoir des différences importantes dans les rejets de tritium entre les REP en raison du type de gaine utilisée. Un faible pourcentage du tritium produit dans les barres de combustible (1 % ou moins) peut être rejeté dans le caloporteur à cause de défauts dans la gaine, dans le cas des nouvelles conceptions de réacteur qui utilisent une gaine en alliage de zirconium. Par exemple, des rejets totaux combinés d'environ 3 x 10^{10} Bq de tritium par MW(e)a pour les effluents

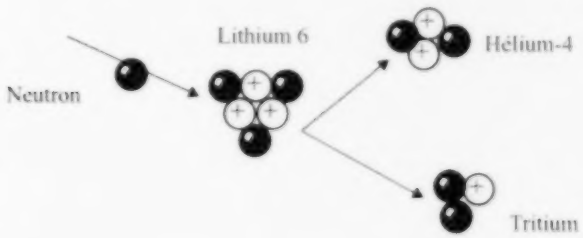
liquides et de 10^9 Bq par MW(e)a pour les effluents en suspension dans l'air ont été signalés pour neuf nouveaux REP comportant du combustible à gaine en alliage de zirconium (y compris les contributions des neuf réacteurs). Par contre, les conceptions plus anciennes de REP, qui utilisent des gaines en acier inoxydable, ont tendance à rejeter la majeure partie du tritium produit dans le combustible par diffusion (Jacobs, 1968). Par exemple, un ancien REP à gaine de combustible en acier inoxydable a rejeté environ 4×10^{11} Bq de tritium par MW(e)a dans ses effluents liquides et environ 4×10^{10} Bq par MW(e)a dans ses effluents atmosphériques (Kahn *et coll.*, 1974), ce qui représente des valeurs plus élevées que les rejets cumulatifs des neuf réacteurs REP plus récents, tel qu'indiqué précédemment.

Du tritium est également produit par fission ternaire de l'uranium 235, mais seulement une petite fraction (≈1 %) de l'hydrogène 3 total produit dans le combustible est générée par diffusion à travers la gaine vers le caloporteur (Lin, 1996; Figure 2.5).

Figure 2.4 : Procédés de production du tritium (tiré de Zerriffi, 1996)

Procédé de production en réacteur :

Collision entre un neutron et un atome de lithium 6, ce qui produit un noyau de tritium et un noyau d'hélium 4



Procédé de production en accélérateur :

Collision entre un neutron et un atome d'hélium 3, ce qui produit un noyau de tritium et un proton

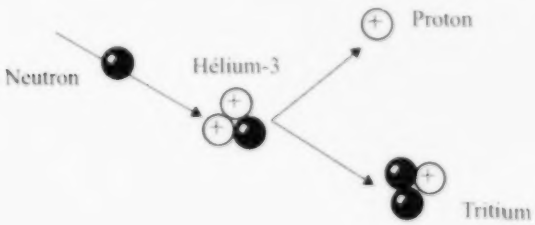
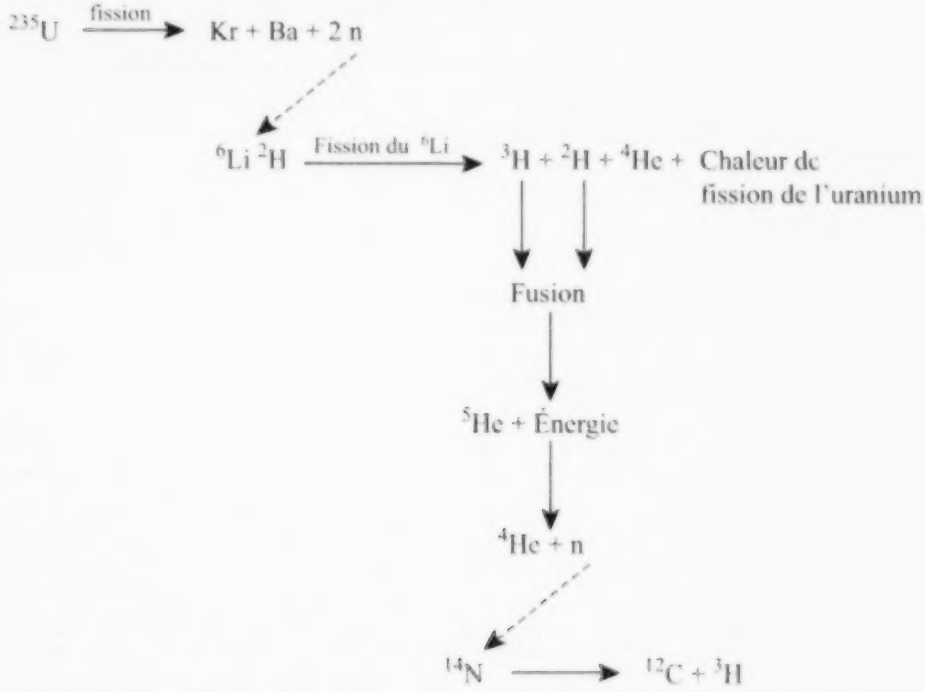


Figure 2.5 : Fission ternaire du ^{235}U dans le combustible du réacteur (tiré de Sültenfuß, 2008)



2.4.2.2 Réacteurs à eau bouillante (REB)

Le tritium dans les réacteurs à eau bouillante (REB) est principalement produit à partir du poison consommable, de la fission ternaire et de l'activation du deutérium. Le tritium est produit dans les REB par fission ternaire dans le combustible à peu près à la même vitesse que dans les REP (c.-à-d. au taux de 6 à 9 x 10^{11} Bq de tritium par MW(e)a). De plus, du tritium peut être généré par activation des neutrons à la fois dans le caloporteur et dans les barres de commande (UN, ILO et WHO, 1983). Par exemple, du tritium est généré dans le caloporteur des REB par activation du deutérium à un taux d'environ 4 x 10^{8} Bq par MW(e)a, tel qu'indiqué dans l'équation suivante :

$$^{2}_{1}H + {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{3}_{1}H \qquad \text{Équation 2.6}$$

En termes de tritium par activation des neutrons dans les barres de commande, avant 1971, on utilisait des barres de commande en carbure de bore dans les REB, ce qui donnait environ 3 x 10^{11} Bq de tritium par MW(e)a (Smith et Gilbert, 1973), bien que le tritium ne semble pas diffuser dans la matrice de carbure de bore (Trevorrow *et coll.*, 1974). Comme dans le cas des REP, les REB actuels utilisent une gaine en alliage de zirconium, ce qui limite les rejets de tritium dans le caloporteur à moins de 7 x 10^{9} Bq par MW(e)a.

La production de tritium et d'activités volumiques correspondantes rejetées par les REB dans l'environnement sont inférieures à celles des REP, et représentent environ un dixième du tritium total général par les REP en raison de l'absence d'acide borique dans le caloporteur (Jones, 2007). De façon générale, il y a moins de tritium produit ou diffusé dans le caloporteur primaire des REB et les taux de rejet moyens sont de 4×10^9 et de 2×10^9 Bq de tritium par MW(e)a dans les effluents liquides et atmosphériques, respectivement (UNSCEAR, 1977).

Les émissions de tritium et d'autres radionucléides sont réduites davantage, étant donné que les REB sont conçus pour retraiter les déchets liquides qui sont générés, ce qui produit très peu ou pas d'effluents liquides, incluant le tritium. La production moins élevée de tritium dans les REB comparativement aux REP facilite la récupération des déchets liquides sans accumulation de tritium à des niveaux totaux dépassant les limites opérationnelles.

2.4.2.3 Réacteurs à eau lourde (REL)

Les réacteurs à eau lourde utilisent de l'eau lourde (D_2O) comme modérateur, réflecteur et caloporteur (Butler, 1963; Jackson, 1964; Holmquist, 1965; Patterson, 1958; Matic-Vukmirovic, 1965). Ces réacteurs produisent du tritium principalement en bombardant le deutérium à l'aide de neutrons (tel qu'indiqué à l'Équation 1.6), avec une production négligeable de tritium suite à la pénétration des produits de fission à travers la gaine d'éléments de combustible mince et à une activité du tritium induite par l'eau lourde (Jacobs, 1968; Tableau 2.2).

Lorsque les pertes de tritium provenant de l'eau lourde sont très faibles, la concentration de tritium dans l'eau lourde dépend du niveau de puissance du réacteur et du temps d'irradiation (Matic-Vukmirovic, 1965). De façon générale, trois réactions jouent un rôle important dans la chimie du tritium des REL (Jacobs, 1968). Celles-ci comprennent : 1) la dissociation du DTO qui s'est formé par irradiation neutronique pour former des radicaux de tritium qui réagissent par la suite avec des radicaux de deutérium pour former du DT; 2) la réaction du D_2O avec le DT pour produire du DTO et du D_2; et 3) la formation de molécules d'hydrogène qui sont appauvris en tritium en raison de la probabilité deux fois plus élevée qu'il y ait formation de radicaux de deutérium comparativement aux radicaux de tritium durant la radiolyse du DTO (Jacobs, 1968). Parmi ces procédés, le premier produit des décharges de tritium gazeux, alors que les deux derniers favorisent la rétention du tritium.

Bien que la quantité de tritium générée dans le combustible des REL par fission ternaire du combustible du réacteur soit à peu près la même que dans les réacteurs à eau ordinaire (comme le REP et le REB), elle est largement dépassée par la production de tritium qui survient dans le caloporteur et le modérateur (D_2O) par activation des neutrons, ce qui correspond environ à 2×10^{13} Bq par MW(e)a (Kouts et Long, 1973; UN, ILO et WHO, 1983).

Les pertes externes de tritium du REL ont tendance à se présenter sous forme de rejets atmosphériques à la cheminée du réacteur, ainsi que sous forme de rejets dans l'eau par les effluents et les eaux souterraines, principalement sous forme de HTO (Jacobs, 1968). Les rejets dans l'environnement dépendent du potentiel de fuite de D_2O, ainsi que de l'activité du tritium dans le caloporteur et le modérateur du réacteur, qui s'accumule en fonction du temps d'irradiation (Jacobs, 1968; UN, ILO et WHO, 1983). Ces rejets contribuent aux pertes annuelles prévues de 0,5 % à 3 %, ce qui correspond aux taux de rejets normalisés du tritium qui sont d'environ 6×10^{11} et $1,5 \times 10^{11}$ Bq par MW(e)a dans les effluents atmosphériques et liquides respectivement, selon les estimations des rejets pendant la vie utile du réacteur (Gratwohl, 1973; UNSCEAR, 1977). De plus, lorsque l'eau lourde sert à la fois de caloporteur et de modérateur, le système complexe d'échangeurs de chaleur et de conduite peut entraîner des bris de conduite et des déversements occasionnels, ce qui peut entraîner la présence de tritium dans l'environnement (Jacobs, 1968).

Le document UNSCEAR (2000) présente des données relatives aux rejets de tritium par les REL pendant la période de 1990 à 1994, ce qui appuie les rejets totaux courants de $7,5 \times 10^{11}$ Bq/MW(e)a. La variabilité est d'environ un ordre de grandeur autour de cette valeur. Le Tableau 2.3 illustre les données relatives aux rejets de tritium plus récents pour les centrales nucléaires canadiennes de type CANDU. La majorité de ces centrales rejettent moins de $7,5 \times 10^{11}$ Bq/MW(e)a, mais demeurent dans la plage présentée par UNSCEAR (2000).

Tableau 2.3 : Rejets de tritium par MW(e)a pour les REL canadiens

Production ou rejet	Pickering	Darlington	Bruce	Gentilly-2	Point Lepreau
Production de puissance (MW(e)a)	3 094	3 542	6 516	675	640
Année du rejet de tritium :	2006 [1]	2006 [1]	2004 [2]	2002 [3]	2002 [3]
Rejet dans l'air (Bq/a)	$5,7 \times 10^{14}$	$2,25 \times 10^{14}$	$8,97 \times 10^{14}$	$1,8 \times 10^{14}$	$1,3 \times 10^{14}$
Rejet dans l'eau (Bq/a)	$3,3 \times 10^{14}$	$1,9 \times 10^{14}$	$5,84 \times 10^{14}$	$5,0 \times 10^{14}$	$1,4 \times 10^{14}$
Rejet normalisé (Bq/MW(e)a)	$2,91 \times 10^{11}$	$1,17 \times 10^{11}$	$2,27 \times 10^{11}$	$1,0 \times 10^{12}$	$4,22 \times 10^{11}$

[1] *Borromeo (2007). Les rejets de Darlington comprennent le HT provenant de l'installation d'extraction du tritium.*

[2] *Brown (2005)*

[3] *CCSN (2003)*

2.4.2.4 Réacteurs refroidis au gaz (RRG)

Du tritium est produit principalement par fission ternaire dans les réacteurs refroidis au gaz à un taux d'environ 7 x 10^{11} Bq par MW(e)a (UN, ILO et WHO, 1983). Du tritium additionnel de l'ordre d'environ 7 x 10^{9} Bq par MW(e)a dans les effluents liquides et de 10^{9} à 10^{10} Bq par MW(e)a dans les effluents atmosphériques peut être produit par activation du lithium dans les réacteurs RRG modérés au graphite (UNSCEAR, 1977).

Les réacteurs refroidis au gaz peuvent utiliser soit des prismes ou des conceptions à lit de boulets, qui constituent l'enveloppe du combustible soit dans des prismes ou des boulets recouverts de graphite. Yook *et coll.* (2006) ont comparé les taux de production de tritium pour ces conceptions. Les taux signalés étaient de l'ordre de 1 à 3 x 10^{11} Bq par MW(e)a par fission ternaire et de 4 à 9 x 10^{10} Bq par MW(e)a par activation du lithium, du bore et de l'hélium, sans différence importante dans la production globale entre ces conceptions.

2.4.2.5 Rejets dans l'air de tritium émis par les réacteurs

La principale source de rejets de tritium dans l'atmosphère est la présence de piscines de combustible irradié (PCI). Le tritium s'accumule au fil du temps dans les PCI en raison du mélange avec le caloporteur du réacteur durant les opérations de rechargement de combustible (Jones, 2007). Les arrêts à mi-cycle du réacteur donnent lieu à un transfert relativement élevé de tritium vers les PCI, étant donné que l'inventaire de tritium dans le circuit caloporteur est à son maximum à ce moment-là. En outre, des défauts dans la gaine du combustible augmentent le transfert du tritium provenant du combustible comparativement à la diffusion considérée isolément.

L'aération du bâtiment où se trouvent les PCI est conçue pour éliminer de manière continue le tritium de l'atmosphère à l'intérieur du bâtiment, ce qui permet de diriger l'évaporation et les rejets de tritium correspondants vers l'extérieur de l'installation. Par conséquent, dans le cas des REP, la majeure partie du tritium qui est rejetée dans l'atmosphère provient des PCI. Dans le cas des REL, le caloporteur (eau lourde) est la source principale de tritium.

2.4.2.6 Rejets liquides de tritium émis par les réacteurs

Bien que l'échange d'ions sert à traiter chimiquement l'eau pour éliminer la plupart des radionucléides, évitant ainsi les rejets dans l'environnement, de tels procédés ne sont pas efficaces pour capter le tritium, étant donné que celui-ci se présente essentiellement sous forme de HTO (Jones, 2007). Par conséquent, en l'absence de technologies d'extraction du tritium, du tritium peut être rejeté dans l'environnement durant le traitement des déchets liquides, par des fuites des circuits ou par d'autres processus (Blomeke, 1964; Haney, 1964; Jones, 2007).

Les fuites aux joints et d'autres fuites de caloporteur entre le côté primaire et secondaire peuvent donner lieu à l'accumulation de tritium dans le caloporteur secondaire (Jones, 2007). De plus, le tritium peut également être diffusé naturellement entre le caloporteur primaire et le caloporteur secondaire par les tubes en U où les taux de diffusion du tritium ont tendance à être relativement élevés dans les anciennes installations. La récupération de purge des générateurs de vapeur maintient cet inventaire, ce qui cause une accumulation de tritium dans le fluide secondaire de refroidissement. Cependant, la purge continue vers un plan d'eau récepteur permet de maintenir les rejets de tritium dans l'environnement à de faibles quantités, ce qui maintient un inventaire de tritium dans le caloporteur secondaire à un bas niveau.

2.4.2.7 Réacteurs à fusion thermonucléaire contrôlée (fusion)

Les technologies d'utilisation à grande échelle de réacteurs thermonucléaires contrôlés pour produire de la chaleur sont en cours d'élaboration (ITER; www.iter.org/). Ainsi, si de tels réacteurs sont utilisés éventuellement, ils contiendront des inventaires importants de tritium, ce qui posera un risque considérable pour la gestion du tritium (NCRP, 1979). Par exemple, un réacteur thermonucléaire contrôlé dont la puissance nominale est de 1 000 MW(e) devrait produire environ 5×10^{17} Bq par jour, avec un inventaire de l'ordre de 10^{19} Bq (Coyle, 1979; Crowson, 1973; Häfele *et coll.*, 1977). Par conséquent, de tels réacteurs doivent être conçus pour éviter les rejets importants de tritium dans l'environnement.

2.4.2.8 Influence du circuit d'eau de refroidissement sur les rejets de tritium

La conception du circuit d'eau de refroidissement d'un réacteur a une incidence sur l'emplacement et sur la quantité de tritium rejeté. Il existe deux grands types de conceptions : circuit à passe unique et circuit à cycle fermé.

Les circuits de refroidissement à passe unique utilisent un écoulement d'eau continu provenant d'un lac, d'une rivière ou de l'océan comme fluide de refroidissement secondaire dans le but d'évacuer la chaleur résiduelle du circuit. Dans ces conceptions, le tritium sous forme de HTO dans le caloporteur est perdu dans les eaux de surface dans lesquelles on a puisé le caloporteur. Tous les réacteurs canadiens utilisent actuellement un système de refroidissement à passe unique.

Les circuits de refroidissement à cycle fermé tirent l'eau des lacs, des rivières ou de l'océan pour servir « d'appoint » pour l'eau perdue par évaporation, la dérive due au vent ou la purge. Il n'y a que très peu de décharge de tritium dans les eaux de surface. Des tours de réfrigération ou des piscines de désactivation sont utilisées pour évacuer la chaleur résiduelle du caloporteur, principalement par évaporation, et le tritium contenu dans l'eau est rejeté simultanément dans l'atmosphère.

Il existe différents types de tours de refroidissement (U.S. DOE, 1993). Dans les tours à réfrigération humide, il y a un contact direct entre l'air et l'eau de refroidissement, ce qui maximise la surface active afin d'accroître l'échange de chaleur. Dans les tours de refroidissement à air sec, il n'y a pas de contact direct; l'eau de refroidissement est contenue dans un réseau de conduites, alors il n'y a pas de perte d'eau de refroidissement ou de tritium à la tour, mais il y a moins d'échange de chaleur. Les refroidisseurs de liquide utilisent une conception hybride; l'eau de refroidissement n'entre pas en contact avec l'air, mais de l'eau propre est appliquée par projection sur les conduites et s'évapore pour favoriser le refroidissement.

Les tours à réfrigération humide et les refroidisseurs de liquides peuvent générer du brouillard, particulièrement lors des journées humides et fraîches, qui sont fréquentes en automne. Le brouillard formé par les tours à réfrigération humide transporte du tritium. Pendant les journées froides d'hiver, des gouttelettes d'eau peuvent se condenser sur les surfaces se trouvant à proximité ou former une gelée blanche. Les concentrations de tritium dans l'eau condensée sont semblables à celles observées dans l'eau de refroidissement recirculée.

Dans les piscines de désactivation, comme les tours de refroidissement, il y a un contact direct entre l'air et l'eau de refroidissement. Cependant, la surface active d'eau exposée est moins grande, il y a moins d'évaporation et moins d'échange de chaleur. En plus de rejeter du tritium dans l'atmosphère, les piscines de désactivation peuvent rejeter de l'eau de refroidissement dans les sols avoisinants et les eaux souterraines et, éventuellement, dans l'eau de surface allant vers l'aval.

Dans n'importe quel système à cycle fermé dans lequel il y a évaporation de l'eau de refroidissement, on observe souvent une accumulation de sels dissous dans l'eau recirculée qui reste. L'eau de refroidissement peut être purgée et remplacée afin d'éviter que la concentration de sel ne devienne trop élevée. De même, les circuits à cycle fermé ont tendance à accumuler des concentrations plus élevées de tritium dans l'eau de recirculation, comparativement aux concentrations dans un circuit à passe unique.

Bien qu'il n'y ait pas d'expérience de CANDU réalisée avec des circuits à cycle fermé, il ne devrait pas y avoir de perte importante de tritium en provenance de l'installation. Plutôt, il y aura des pertes redirigées vers l'atmosphère, soit dans les tours de refroidissement ou les piscines de désactivation, ou au condenseur par des éjecteurs d'air. Sur le plan environnemental, le principal avantage est que l'on redirige la chaleur résiduelle vers l'atmosphère, plutôt que vers des eaux de surface adjacentes.

2.4.3 Usines de retraitement du combustible

La majeure partie du tritium produit dans les barres de combustible de réacteur est contenue dans le combustible jusqu'à son retraitement (le cas échéant), plutôt que d'être rejetée dans l'environnement à proximité du réacteur (Albenesius et Ondrejcin, 1960; Blomeke, 1964; Holmquist, 1965; UN, ILO et WHO, 1983). À l'étape du retraitement du combustible dans le

cycle du combustible nucléaire (s'il y a lieu), l'uranium et le plutonium sont récupérés du combustible nucléaire irradié en vue d'être réutilisés dans les réacteurs de fission. Durant le retraitement, l'uranium est d'abord retiré de la gaine, puis dissous dans de l'acide nitrique, ce qui rejette la majeure partie du tritium dans un effluent liquide. Une certaine partie du tritium est également rejetée sous forme de dégagement gazeux du dissolveur et le reste est immobilisé dans la gaine sous forme d'hydrure de zirconium solide ou de tritium dissous dans le métal (UN, ILO et WHO, 1983).

Comme c'est le cas pour les réacteurs qui utilisent de l'eau comme caloporteur primaire, le tritium issu du retraitement est rejeté dans l'environnement principalement sous forme de HTO. Le tritium est rejeté dans l'atmosphère par les cheminées, ainsi que par le sol ou les eaux de surface dans les déchets liquides de faible activité, où seulement 2 à 5 % du tritium total comme produit de fission est retenu dans les réservoirs avec les déchets de haute activité (Blomeke, 1964; Jacobs, 1968). Étant donné qu'il n'existe pas de système de rétention du tritium dans les usines de retraitement actuellement en exploitation, l'activité rejetée correspond à la concentration de tritium des éléments de combustible au moment du retraitement, à l'exception du tritium ayant été immobilisé dans la gaine. Le taux de production de tritium dans les réacteurs est d'environ 75 x 10^{10} Bq par MW(e)a, et environ la moitié de la concentration théorique dans le combustible semble ne pas être considérée dans les usines de retraitement du tritium actuelles (UN, ILO et WHO, 1983).

2.4.4 Installations de production de tritium

Comme il y a peu de tritium naturel, on doit en produire artificiellement pour l'utiliser sur le plan pratique. Ainsi, du tritium peut être généré dans des réacteurs de production qui ont été conçus spécifiquement pour optimiser la production de tritium et d'autres matières nucléaires (ANL, 2005). Dans de telles installations, le tritium peut être produit par irradiation du métal, des alliages ou des sels de lithium (General Nuclear Engineering Corp., 1959; Jacobs, 1968; Johnson, 1962; Magee *et coll.*, 1960). Par exemple, un atome de ^{6}Li peut se combiner à un neutron dans le processus d'activation neutronique pour former un atome de ^{7}Li. L'atome de ^{7}Li se divise immédiatement pour former du tritium et du ^{4}He (tel qu'indiqué dans l'Équation 2.5). Ce tritium fait l'objet d'une séparation isotopique des autres isotopes de l'hydrogène et est ensuite traité dans une usine d'extraction du tritium (Crowson, 1973).

À la lumière des données recueillies pour l'usine de Savannah River (principale source de tritium aux États-Unis), les émissions atmosphériques par les cheminées se produisent au taux de 4,1 x 10^{16} Bq/a en moyenne, et peuvent se situer entre 1,4 x 10^{16} et 9,9 x 10^{16} Bq/a (Murphy et Pendergast, 1979). Les rejets de ces installations sont constitués d'environ 20 % de HT et de 80 % de HTO dans des conditions d'exploitation normales, avec des rejets accidentels principalement sous forme de HT gazeux.

Les rejets atmosphériques accidentels peuvent augmenter la quantité de HT rejetée jusqu'à 60 % du tritium total rejeté (Murphy et Pendergast, 1979). À titre de comparaison, la quantité de tritium rejetée dans les effluents liquides semble représenter environ 10 % des rejets

atmosphériques (NCRP, 1979). Les rejets des installations de production de tritium peuvent être réduits par la mise en place de mesures visant à optimiser le rendement du tritium durant le traitement (Jacobs, 1968).

Bien que cette méthode ne soit pas appliquée à grande échelle, du tritium peut également être produit dans les accélérateurs en bombardant de neutrons du ^{3}He (tel qu'illustré à la Figure 2.4) (Zerriffi, 1996). Il peut se former du tritium dans les accélérateurs d'électrons ou de protons refroidis à l'eau ordinaire, principalement par spallation des atomes d'oxygène dans les molécules d'eau. De petites quantités de tritium peuvent également être produites par spallation de l'azote, du carbone ou d'une autre molécule légère. Ces rejets de tritium dans l'environnement peuvent prendre la forme de rejets atmosphériques et possiblement de rejets liquides, selon la conception du circuit de refroidissement.

2.4.5 Produits de consommation

Les rejets de tritium sous forme de HTO, de HT et de radicaux organiques à chaîne courte du type styrène, émis par les composés lumineux (comme ceux qui sont utilisés dans les peintures pour cadrans), représentent chaque année environ 5 % du tritium total (Comps et Doda, 1979; Krejci, 1979; Krejci et Zeller, 1979; UNSCEAR, 1977; Wehner, 1979). Ces rejets peuvent atteindre jusqu'à 10^{14} Bq de tritium par année (Krejci, 1979).

Les rejets de tritium associés aux tubes à gaz, comme ceux qui sont utilisés dans l'affichage à cristaux liquides (LCD) et les rejets de tritium contenu dans les signaux de sortie ou les tubes électroniques sont négligeables en comparaison, et atteignent environ 2×10^{12} Bq de tritium par année (Krejci, 1979; UN, ILO et WHO, 1983). Cependant, les rejets environnementaux suite à une fuite accidentelle de tubes ou à une évacuation inadéquate peuvent être importants (Comps et Doda, 1979; Wehner, 1979).

Mutch et Mahony (2008) ont signalé des concentrations de tritium dans le lixiviat de décharges municipales, qui étaient attribuées à l'évacuation de ce genre de produits. Dans une étude portant sur 10 décharges de New York et du New Jersey, le tritium moyen sous forme de HTO dans le lixiviat était de 1 251 Bq/L et le maximum était de 7 104 Bq/L. Une étude semblable portant sur des décharges de la Californie a indiqué des concentrations moyennes de tritium dans le lixiviat de 3 663 Bq/L et un maximum de 11 248 Bq/L. Selon certaines études, les condensats de gaz de décharge au Royaume-Uni et en Californie atteignent des concentrations de tritium aussi élevées que 2 013 Bq/L et 18 981 Bq/L, respectivement.

3.0 COMPORTEMENT PHYSIQUE ET CHIMIQUE DU TRITIUM DANS L'ATMOSPHÈRE

La présente section donne un aperçu du comportement physique et chimique du tritium dans l'atmosphère. Aussi, les facteurs importants pour la dispersion atmosphérique des panaches de tritium et les effets possibles des changements climatiques sur le comportement du tritium et son transport dans l'environnement seront abordés.

3.1 Comportement physique du tritium

3.1.1 Désintégration radioactive

Le tritium est le seul isotope radioactif de l'hydrogène ayant été observé dans la nature. Par contre, on a réussi à produire en laboratoire des isotopes radioactifs de l'hydrogène à période extrêmement courte (p. ex., ^{4}H à ^{7}H) (Audi et Wapstra, 1995; Friedlander *et coll.*, 1981; Kelley et Tilley, 1987; Kinsey, 1999). Le tritium est un émetteur bêta ayant une période radioactive de 12,32 ans, une énergie maximale de 18 keV et une énergie moyenne de 5,7 keV (Lucas et Unterweger, 2000; UN, ILO et WHO, 1983; Unterweger *et coll.*, 1980). Le tritium se désintègre en donnant comme produit de filiation le ^{3}He stable, tel qu'indiqué dans l'équation suivante :

$$^{3}H \rightarrow {}^{3}He + \beta^{-} + \text{Énergie} \qquad \text{Équation 3.1}$$

3.1.2 Autres propriétés physiques

Le transfert du tritium dans l'environnement est régi par un certain nombre de processus physiques. Ceux-ci comprennent le remplacement isotopique (échange isotopique) et la diffusion.

La diffusion est le mélange du tritium dans différentes zones environnementales par suite du mouvement moléculaire aléatoire qui transporte la matière d'un point à un autre. Étant donné que les molécules sont en mouvement constant, la diffusion se produit dans les gaz, les liquides et les solides. Par exemple, le HT gazeux se diffuse dans les espaces interstitiels du sol, où il est rapidement oxydé en HTO par des microorganismes (12 % à 66 % par heure, selon le type de sol) (Dunstall *et coll.*, 1985a, b; McFarlane *et coll.*, 1978, 1979). En général, le taux de diffusion augmentera en fonction de la température et de la turbulence dans un milieu environnemental donné, ce qui accroît ainsi le taux de transport et de mélange dans l'environnement. Cela peut causer des changements saisonniers dans le transport environnemental des contaminants, comme le tritium, par les processus de diffusion.

En plus de la diffusion, il y a transport du tritium dans l'environnement par remplacement isotopique. Le remplacement isotopique est un processus par lequel deux atomes représentant des isotopes différents du même élément changent de place dans la même molécule ou dans des molécules différentes. Par exemple, dans l'eau tritiée, ce phénomène se produit lorsqu'un atome de tritium contenu dans une molécule d'eau change de place avec un atome d'hydrogène présent dans une molécule d'eau adjacente (ANL, 2005). Par conséquent, le

tritium est naturellement présent en très faible pourcentage d'hydrogène ordinaire dans l'eau, à la fois à l'état liquide ou gazeux. Le remplacement isotopique des atomes d'hydrogène par le tritium peut également se produire dans le cas du tritium d'origine anthropique, ainsi que dans d'autres molécules que l'eau qui contiennent des atomes d'hydrogène. Par exemple, à la température ambiante, la combinaison de l'hydrogène gazeux (H_2) et du (T_2) pour produire du HT est favorisée (Jones, 1948).

Les isotopes d'un même élément participent aux mêmes réactions chimiques, mais comme les atomes de différents isotopes diffèrent en ce qui a trait à la taille ou à la masse atomique, ils ont tendance à réagir à des vitesses différentes. Par exemple, les processus physiques, comme l'évaporation et la diffusion, peuvent être différents dans le cas des isotopes lourds, parce qu'ils se déplacent plus lentement dans l'environnement. En outre, la discrimination enzymatique et les différences dans les caractéristiques cinétiques et dans l'équilibre peuvent générer des produits de réaction qui sont des isotopes plus lourds ou plus légers que leurs précurseurs. Dans le cas des isotopes de l'hydrogène, même si le tritium suit de près les réactions de l'hydrogène ordinaire, les différences de masse relativement importantes entre les isotopes de l'hydrogène (tel qu'indiqué au Tableau 3.1) permettent d'observer des effets isotopiques assez marqués (Jacobs, 1968).

Tableau 3.1 : Masse atomique des différents isotopes de l'hydrogène contribuant à la séparation isotopique dans l'environnement (tiré de Lange et Forker, 1961)

Isotope de l'hydrogène	Symbole	Masse atomique (g)
Proton	^1H	1,00814 ± 0,000003
Deutéron	^2H	2,014735 ± 0,000006
Triton	^3H	3,016997 ± 0,000011

Comme nous l'avons vu plus tôt, les processus physiques, comme les changements de phases, qui peuvent avoir une incidence sur le transport du tritium dans l'environnement sont plus lents dans le cas des isotopes lourds. Par exemple, le Tableau 3.2 contient un résumé des propriétés thermodynamiques clés pour les différents oxydes des isotopes de l'hydrogène, y compris le H_2O, le D_2O et le T_2O (Bigeleisen, 1962; Jacobs, 1968; Smith et Fitch, 1963). À la lumière de ces données, l'augmentation du point d'ébullition et de la chaleur latente de vaporisation varient selon la masse atomique de l'isotope de l'hydrogène en cause. Ces différences physiques entre les isotopes de l'hydrogène mènent à des déclins correspondants de la vitesse d'évaporation dans la nature dans le cas des molécules d'eau plus lourde qui ont des points d'ébullition et des chaleurs latentes de vaporisation plus élevés. En outre, les isotopes d'entropie plus élevée peuvent entraîner des taux de mélange plus importants.

Tableau 3.2 : Propriétés thermodynamiques des oxydes des isotopes de l'hydrogène (Bigeleisen, 1962; Jacobs, 1968; Smith et Fitch, 1963)

Propriétés thermodynamiques	Oxydes des différents isotopes de l'hydrogène		
	H_2O	D_2O	T_2O
Point d'ébullition (°C)	100,00	101,42	101,51
Point triple-température (°C)	0,010	3,82	4,49
Point triple-pression (mmHg)	4,58	5,02	4,87
Chaleur latente de vaporisation au point d'ébullition (kcal/mole)	9,72	9,9	10,1
Entropie (à 298 K)	16,75	18,9	19,0

Les conditions physiques du milieu, comme la température, la pression, l'humidité relative de même que la présence et l'intensité d'un gradient de concentration dans l'environnement, peuvent également avoir une influence sur le transport du tritium. Par exemple, les vitesses de réaction (y compris le taux de remplacement isotopique, l'oxydation du HT en HTO, l'activité biologique, etc.) et les vitesses de mouvement moléculaire (qui peuvent augmenter le taux de mélange environnemental) augmentent habituellement en fonction de la température. De plus, l'augmentation de la température peut entraîner des changements de phase (par exemple de l'état solide à l'état liquide et de l'état liquide à l'état vapeur). La diminution de la température peut causer des changements de phase opposés. La solubilité d'un solide dans l'eau augmentera généralement en fonction de la température, alors que la solubilité d'un gaz dans l'eau diminuera en fonction de la température. L'augmentation de la pression peut également entraîner une augmentation de la vitesse de réactivité, ainsi que des mélanges physiques causés par le mouvement des molécules, ce qui augmente la pression.

Le changement de phase de l'eau à la vapeur d'eau présente un intérêt particulier. La vapeur est le nom donné aux molécules de gaz d'une substance à la température et à la pression auxquelles la substance est considérée comme liquide. Les liquides possédant de faibles forces d'attraction moléculaire, comme l'eau, se vaporisent facilement à des températures de beaucoup inférieures au point d'ébullition. Le processus inverse, lorsque les molécules de vapeur se transforment en gouttelettes et adhèrent à la surface de l'eau (ou à une autre surface) porte le nom de condensation. La pression de vapeur est la pression de la vapeur dans un espace fermé au-dessus du liquide, c'est-à-dire à saturation, lorsque les vitesses de vaporisation et de condensation sont égales. La pression de vapeur augmente en fonction de la température.

Une baisse soudaine de la température dans des conditions humides peut entraîner la formation de vapeur d'eau dans l'air, qui se condense en fines gouttelettes (brouillard). Le point de rosée est la température à laquelle l'air doit être refroidi pour causer la condensation de sa vapeur d'eau. Si le point de rosée est inférieur au point de congélation, on l'appelle

souvent point de givrage, parce que la condensation forme une gelée blanche. Le point de rosée (T_d) peut être calculé approximativement à partir de la température (T) et de l'humidité relative (H), comme suit (Lawrence, 2005) :

$$T_d = T - (100 - RH)/5 \qquad \text{Équation 3.2}$$

Cette équation est précise à ±1°C lorsque l'humidité relative est supérieure à 50 %.
Les températures automnales sont particulièrement propices à la formation de brouillard. Le rejet de gaz chaud et humide par les cheminées dans l'air ambiant plus frais peut également produire un brouillard localisé, sous forme de panache de vapeur visible.

3.1.3 Mobilité dans l'environnement

Comme nous l'avons vu à la Section 2, le tritium se comporte beaucoup comme l'hydrogène dans l'environnement, sauf pour ce qui est de sa désintégration en hélium, ainsi que de certaines des caractéristiques isotopiques propres aux différents isotopes de l'hydrogène (Section 3.1.2). Le tritium naturel et les retombées de tritium sont principalement produits dans la stratosphère, où ils se présentent généralement sous forme d'eau tritiée (ou de HTO) (UN, ILO et WHO, 1983).

L'altitude a un effet prononcé sur les réactions qui se produisent dans l'atmosphère. Ainsi, le TO_2 a tendance à se transformer en HTO à des altitudes inférieures à 5 km (Jacobs, 1968). À titre de comparaison, à des altitudes se situant entre 10 et 40 km, le HT est généralement présent sous forme de tritium, alors qu'en dessous de 40 km, les concentrations plus faibles font en sorte que la contribution du HT aux niveaux totaux de tritium est négligeable (Harteck, 1954). La concentration de tritium dans l'hydrogène atmosphérique demeure relativement stable, alors qu'il y a des variabilités localisées dans l'eau de pluie (Harteck, 1954; Libby, 1953).

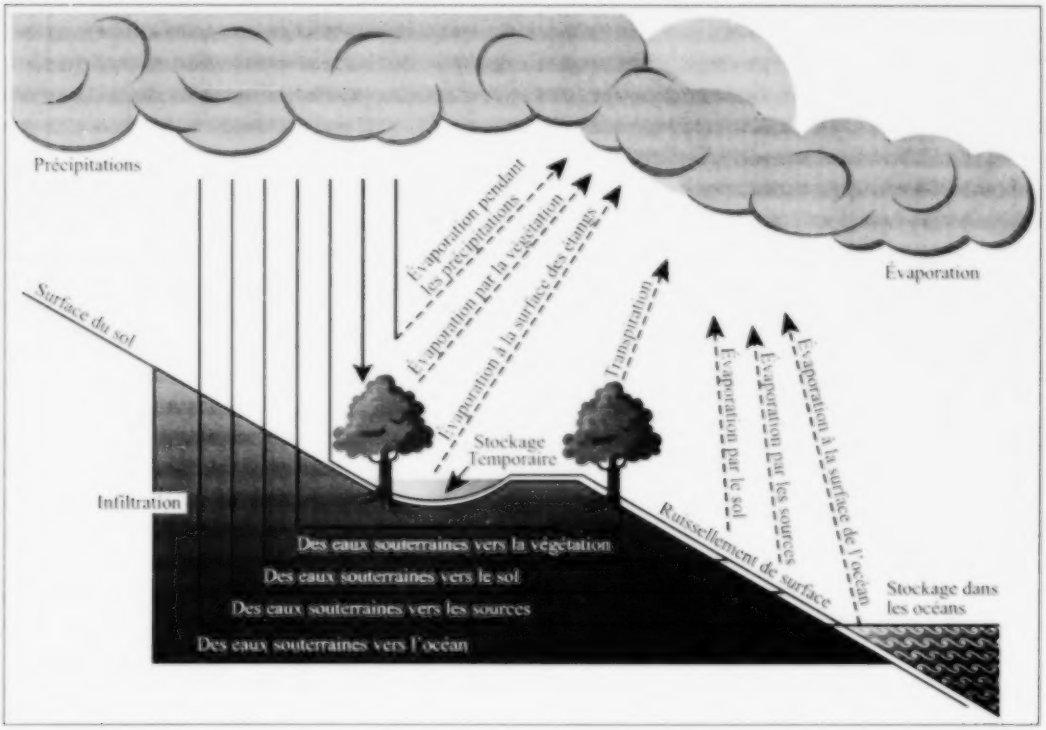
Dans le cas des nuages thermonucléaires, de l'hydrogène tritié est produit dans la stratosphère par dissociation radiative de l'eau dans des conditions d'oxydation (Martell, 1963). Le méthane tritié se forme dans les échanges troposphériques entre le méthane et l'hydrogène tritié qui provient de la stratosphère. L'activité spécifique du tritium du méthane atmosphérique est de plusieurs ordres de grandeur plus élevée que celle de l'eau de pluie, mais inférieure à celle de l'hydrogène atmosphérique et à celle de la vapeur d'eau stratosphérique (Harteck, 1954).

Les atomes de tritium produits en haute atmosphère par le rayonnement cosmique ont une énergie cinétique élevée et s'oxydent rapidement (Jacobs, 1968). À des pressions inférieures à la pression atmosphérique, on observe plutôt une collision entre l'oxygène (O_2) qui forme initialement un radical relativement stable, le HO_2 (Harbeck, 1954). Ce radical peut ensuite réagir avec l'ozone (O_3) suite à des réactions de décomposition photochimique répétées du TO_2 pour former du HTO, plutôt que du HT, dans l'atmosphère. Une fois que le tritium a été incorporé aux molécules d'eau, le HTO retombe à la surface de la Terre sous forme de pluie et de neige, pénétrant ainsi dans le cycle naturel de l'eau (Figure 3.1; Stamoulis *et coll.*, 2005; UN, ILO et WHO, 1983).

Une autre réaction initiale possible est la collision du tritium avec une molécule de H_2, ce qui entraîne un échange isotopique qui forme du HT. De petites quantités de tritium, représentant moins de 1 % de la quantité produite chaque jour, peuvent également se former lors d'une réaction entre le tritium et l'oxygène, par rayonnement bêta issu de la désintégration du tritium (Dorfman et Hemmer, 1954; Yang et Gevantman, 1960).

Le transfert de la vapeur d'eau tritiée de la stratosphère à la troposphère se produit en suivant une période d'environ un an, après quoi elle se dépose à la surface de la terre sous forme de chute de pluie et d'échange moléculaire, avec une période de l'ordre de 10 jours. Le HTO déposé est ensuite transporté dans l'environnement en suivant le cycle de l'eau (Figure 3.1; Jacobs, 1968).

Figure 3.1 : Modèle conceptuel illustrant le cycle de l'eau (tiré de Baver, 1956)

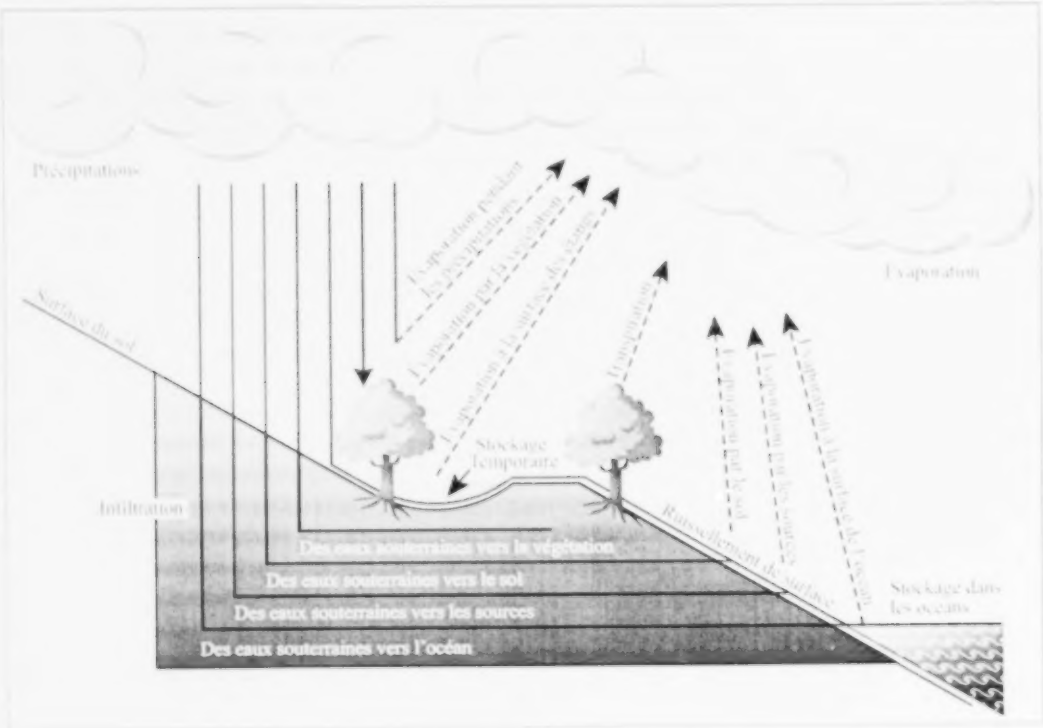


À la suite du dépôt à la surface des océans, l'eau tritiée se dilue dans la couche mixte. Par la suite, une proportion de ce HTO s'évapore dans l'atmosphère à une concentration beaucoup plus faible. Une petite fraction est transportée vers les profondeurs océaniques (UN, ILO et WHO, 1983). À titre de comparaison, l'eau tritiée qui s'est déposée à la surface du sol se répartit en ruissellement vers les étangs, les lacs, les sources ou les océans et en infiltration dans le sol. Suite à l'infiltration dans le sol, le HTO peut être absorbé par les plantes, s'évaporer et retourner dans l'atmosphère, ou être transporté sous la surface par les eaux souterraines vers des plans d'eau douce à la surface du sol ou dans les océans.

Une autre réaction initiale possible est la collision du tritium avec une molécule de H_2, ce qui entraîne un échange isotopique qui forme du HT. De petites quantités de tritium, représentant moins de 1 % de la quantité produite chaque jour, peuvent également se former lors d'une réaction entre le tritium et l'oxygène, par rayonnement bêta issu de la désintégration du tritium (Dorfman et Hemmer, 1954; Yang et Gevantman, 1960).

Le transfert de la vapeur d'eau tritiée de la stratosphère à la troposphère se produit en suivant une période d'environ un an, après quoi elle se dépose à la surface de la terre sous forme de chute de pluie et d'échange moléculaire, avec une période de l'ordre de 10 jours. Le HTO déposé est ensuite transporté dans l'environnement en suivant le cycle de l'eau (Figure 3.1; Jacobs, 1968).

Figure 3.1 : Modèle conceptuel illustrant le cycle de l'eau (tiré de Baver, 1956)



À la suite du dépôt à la surface des océans, l'eau tritiée se dilue dans la couche mixte. Par la suite, une proportion de ce HTO s'évapore dans l'atmosphère à une concentration beaucoup plus faible. Une petite fraction est transportée vers les profondeurs océaniques (UN, IEO et WHO, 1983). À titre de comparaison, l'eau tritiée qui s'est déposée à la surface du sol se répartit en ruissellement vers les étangs, les lacs, les sources ou les océans et en infiltration dans le sol. Suite à l'infiltration dans le sol, le HTO peut être absorbé par les plantes, s'évaporer et retourner dans l'atmosphère, ou être transporté sous la surface par les eaux souterraines vers des plans d'eau douce à la surface du sol ou dans les océans.

La majeure partie du tritium rejeté dans la basse atmosphère se retrouve dans l'océan en moins d'un an (NCRP, 1979). Une petite quantité (21 %) pénètre dans l'eau du sol, dans l'eau douce en surface et dans les eaux souterraines et suit un trajet plus long vers les océans. Après 70 ans, moins de 9 % se retrouvent dans les eaux souterraines et le reste se retrouve dans l'océan.

Les concentrations de tritium dans les eaux de surface continentales (sous forme de HTO) ont tendance à être plus élevées que celles à la surface des océans (Brown, 1964; Eriksson, 1965; Israel *et coll.*, 1963, Schell *et coll.*, 1974; Weiss *et coll.*, 1979b, Momoshima *et coll.*, 1991). Cela est causé par la dilution relativement faible suivant le mélange avec l'eau de surface sur les terres émergées, comparativement au potentiel de dilution dans les eaux océaniques. Par conséquent, les concentrations d'activité du tritium dans la vapeur d'eau qui ont subi une deuxième évaporation à la surface des plans d'eau continentaux sont semblables à celles qui se produisent dans les précipitations originales, particulièrement dans le cas des petits plans d'eau. À titre de comparaison, les précipitations qui se déposent sur les océans ou dans des plans d'eau profonds se mélangent rapidement, et sont fortement diluées, ce qui donne lieu à des concentrations de tritium plus faibles dans la vapeur d'eau réévaporée, comparativement aux concentrations contenues dans les précipitations originales.

Les concentrations de tritium dans l'atmosphère varient également en fonction de la latitude et des saisons (Hauglustaine et Ehhalt, 2002). Par exemple, en plus de la différence observée dans l'eau continentale et dans les concentrations du tritium océanique, des différences surviennent également suite au mouvement des masses d'air entre les latitudes. Plus particulièrement, les concentrations de tritium sont habituellement plus élevées dans les précipitations provenant des masses d'air dont la trajectoire est du Nord et de l'Ouest, comparativement à celles qui proviennent du Sud et de l'Est, principalement à cause des différences de latitude dans les vitesses de transfert du tritium provenant de la stratosphère (Brown, 1964).

On estime que les processus d'échange de vapeur représentent environ les deux tiers de l'élimination du tritium des océans (Erikkson, 1965) et qu'ils sont généralement à l'origine du transfert du tritium vers l'eau du sol terrestre. D'autres échanges peuvent se produire entre le tritium atmosphérique et les précipitations, tel qu'indiqué par l'intensité des chutes de pluie, ainsi que par la taille et la surface active correspondante des gouttes de pluie. Le tritium est ensuite transféré à la surface de la terre par précipitation.

Dans le cas des faibles chutes de pluie, les concentrations de tritium dans les précipitations sont représentatives de celles que l'on trouve à des altitudes plus basses dans l'atmosphère, alors que dans le cas des chutes de pluie modérées ou importantes, les échanges des concentrations plus faibles sont considérés comme étant négligeables (Bolin, 1961). Tel qu'indiqué par Sejkora (2006), les chutes de pluie légère et de longue durée peuvent entraîner des concentrations de tritium plus élevées dans les eaux souterraines, les eaux de ruissellement, les collecteurs d'eaux pluviales et les sols, comparativement aux événements intenses et de courte durée. Cela peut être important lorsqu'on considère l'influence des tempêtes importantes et l'incidence possible des changements climatiques sur ce phénomène.

Les concentrations de tritium dans les précipitations (sous forme de HTO) augmentent en fonction de la longueur du trajet parcouru à travers les masses d'air. Par exemple, des comparaisons des concentrations de tritium dans les précipitations en fonction des facteurs météorologiques (comme le type de tempête, l'altitude à laquelle se forment les précipitations, la durée et l'intensité des chutes de pluie et le type et l'origine des masses d'air) ont révélé des augmentations dans les concentrations de tritium sous forme de précipitations, à mesure que la masse d'air est traversée par les précipitations qui augmentent (Brown, 1964).

Selon l'intensité des précipitations, la taille et la surface active des gouttelettes de pluie peuvent également avoir une incidence sur les échanges de tritium entre la vapeur d'eau et les gouttelettes de pluie durant le processus de diffusion par couche entre les gouttelettes (Chamberlain et Eggleton, 1964). De façon générale, l'activité spécifique du tritium contenu dans les gouttes de pluie qui ont traversé un panache contaminé dépend beaucoup de la taille des gouttelettes : les concentrations de tritium sont moins élevées dans les grosses gouttes de pluie en raison du rapport entre l'aire et le volume, qui est plus faible dans les gouttelettes plus grosses. Ainsi, la dilution du tritium est plus élevée dans les grosses gouttes.

Dans le cas des particules de neige et de glace, on pourrait s'attendre à ce que le tritium traverse l'interface entre l'air et les particules, à la surface des particules. Cependant, ce processus peut être moins prononcé pour la neige et la glace en raison des températures plus basses, ainsi que des vitesses de diffusion plus lentes dans les particules gelées, comparativement aux gouttes de pluie.

Davis (1997) et Konig *et coll.*, (1984) ont déterminé les coefficients de lessivage durant les chutes de neige et Davis a établi une comparaison entre ces valeurs et les coefficients de lessivage observés durant les pluies. Le coefficient de lessivage est une constante de vitesse (s^{-1}) qui reflète la vitesse de capture du tritium de l'air par les précipitations de neige ou de pluie. Pour une chute de neige de 1 mm/h (en équivalent d'eau), des coefficients de lessivage de $2{,}1 \times 10^{-5}$ s^{-1} et de $2{,}6 \times 10^{-5}$ s^{-1} ont été signalés par Davis (1997) et Konig *et coll.*, (1984), respectivement. À titre de comparaison, des coefficients de lessivage plus élevés d'environ 10^{-4} s^{-1} ont été signalés pour les chutes de pluie d'intensité semblables (Chamberlain et Eggleton, 1964; Tadmor, 1973; Abrol, 1990; Gulden et Raskob, 1992).

Les retombées sèches de tritium dans les accumulations de neige en hiver ou dans l'eau du sol en été se produisent par échange direct de vapeur avec la neige ou l'eau du sol. Ce transfert s'exprime souvent comme une vitesse de dépôt (m/s). Davis (1997) a déterminé une vitesse de dépôt de $1{,}6 \times 10^{-3}$ m/s pour le transfert du tritium vers les accumulations de neige en hiver. Barry (1964) a indiqué une vitesse de dépôt de $3{,}0 \times 10^{-3}$ m/s. Par contre, des vitesses de dépôt plus élevées de $4{,}0 \times 10^{-3}$ m/s et de $2{,}0 \times 10^{-3}$ m/s ont été signalées par Gulden *et coll.* (1990) et Bunnenberg *et coll.* (1992) pour des conditions estivales.

Les facteurs saisonniers ont également une incidence sur le transport du tritium d'un milieu environnemental à un autre. Par exemple, suite au dépôt sur la surface du sol, l'eau tritiée (à l'état liquide) peut pénétrer dans les eaux souterraines et les eaux de surface par infiltration et ruissellement, respectivement durant les périodes où le sol n'est pas gelé ou recouvert de neige. En outre, l'évaporation du HTO aqueux dans l'air peut se produire. À titre de comparaison, en hiver, si le sol est recouvert de neige, le tritium peut se déposer et s'accumuler dans la neige, où il demeure habituellement jusqu'à la fonte (Davis, 1997). Cela peut entraîner des entrées de tritium saisonnières dans le sol et dans les plans d'eau au dégel. Il peut également y avoir des délais entre les rejets de tritium provenant de l'accumulation de neige vers l'atmosphère en raison des vitesses d'échange de tritium plus lentes entre l'air et la neige en hiver.

À titre d'exemple d'effets associés à la fonte des neiges, des études réalisées à l'installation de SRBT (Section 5.1.1) montrent que le tritium est très présent au printemps dans des échantillons de neige fondue recueillis au nord-ouest de la propriété, à proximité de la cheminée qui rejette du tritium dans l'atmosphère. La présence de neige stockée dans cette zone contribue probablement aux concentrations de tritium élevées dans les eaux souterraines à cet endroit.

3.2 Transformations chimiques du tritium

Les rejets industriels de tritium sont principalement constitués de HTO et de HT, et dans certains cas, de méthane tritié (CH_3T) (ATSDR, 2002; McCubbin *et coll.*, 2001). Le temps de séjour du HT et du CH_3T dans l'atmosphère n'est pas bien connu, même si des valeurs de cinq à dix ans ont été estimées (Burger, 1979). Des différentes formes anthropiques possibles du tritium, le HTO est celle qui présente le plus d'intérêt étant donné qu'elle a tendance à être beaucoup plus active sur le plan biologique que les autres formes (UN, ILO et WHO, 1983).

Lorsque du tritium est rejeté sous forme de gaz (HT) ou de HTO sous forme de vapeur (comme dans le cas des rejets atmosphériques), il peut être concentré par séparation chimique ordinaire de l'hydrogène et de la vapeur d'eau contenus dans l'air. Par contre, lorsque le HTO se trouve dans des solutions aqueuses (comme dans les effluents liquides), il est impossible de le séparer et de le concentrer par des techniques de traitement des déchets classiques (Blomeke, 1964; Jacobs, 1968). Plutôt, les séparations isotopiques sont requises, ce qui peut être difficile. Les procédures plus satisfaisantes de séparation isotopique sont habituellement de nature physique parce que les différences de masse donnent lieu à des différences relatives plus importantes dans les propriétés physiques que dans les propriétés chimiques (Moeller, 1954). En raison de la similarité des propriétés du HTO et du H_2O, le tritium suit généralement l'eau ordinaire dans les sources de traitement et dans le milieu soumis à de telles conditions (Haney, 1964; Moeller, 1954).

3.2.1 Transformation du tritium du HT en HTO

Lors de son rejet dans l'atmosphère le processus d'extraction clé du HT comprend l'oxydation photochimique dans l'air et l'oxydation bactérienne dans le sol, ce qui permet la transformation en HTO (Dunstall *et coll.*, 1985a, 1985b; Hart, 2008). Le processus

atmosphérique est lent, avec une période radioactive de > 5 années, alors qu'un taux d'oxydation beaucoup plus élevé se produit à l'interface air sol avec une période radioactive de 40 minutes à cinq heures (Mishima et Steelec, 2002; McFarlane *et coll.*, 1978, 1979). Les réactions chimiques sont les suivantes :

$$H_2 + OH \longrightarrow H + H_2O \qquad \textit{photochimique} \qquad \text{Équation 3.3}$$

$$H + O_2 + M \longrightarrow HO_2 + M \qquad \textit{(M = autre molécule)}$$

$$2H_2 + O_2 \longrightarrow 2H_2O \qquad \textit{bactérienne}$$

Une certaine partie du HTO qui s'est formée à l'interface air sol est captée par les racines des plantes avec l'eau de transpiration, et une certaine partie est émise dans l'atmosphère (Neil, 1991, 1992). Ce HTO est disponible pour l'incorporation par les animaux et les humains suite à l'inhalation et l'ingestion, ainsi que par les feuilles des plantes.

Le transfert du HT en HTO dans l'air, suite à l'oxydation du HT dans le sol et de la réémission subséquente, peut être formulé comme suit (Hart, 2008; Neil, 1991, 1992) :

$$P_{11a} = R_{HT} \bullet H_a \bullet f_{oxyd} \qquad \text{Équation 3.4}$$

où: P_{11a} = paramètre de transfert du HT dans l'air au HTO dans l'air ($Bq \bullet m^{-3}/Bq \bullet m^{-3}$)

R_{HT} = rapport de la concentration de HTO dans l'humidité de l'air ($Bq \bullet L^{-1}$) à la concentration de HT dans l'air ($Bq \bullet m^{-3}$)

f_{oxyd} = fraction d'une année où l'oxydation s'est produite (sans unité)

H_a = humidité absolue ($L \bullet m^{-3}$)

Les valeurs par défaut du P_{11a}, telles que recommandées par Hart (2008) sont indiquées au Tableau 3.3.

Tableau 3.3 : Valeurs par défaut pour le P_{11a}, transfert du HT au HTO dans l'air (sans unité)

Paramètre	Sud de l'Ontario	Ouest de l'Ontario	Est de l'Ontario	Québec	Maritimes
H^a (sans neige) ($L \bullet m^{-3}$)	0,0089	0,0085	0,0080	0,0076	0,0075
f_{oxyd} (sans unité)	0,75	0,75	0,67	0,67	0,75
P_{11a} (sans unité)	0,053	0,051	0,043	0,041	0,045

Remarques :

- *RHT [$Bq \bullet L^{-1}(HTO) \bullet Bq^{-1} \bullet m^3(HT)$] = 8*
- *Les données propres au site des LCR indiquent que RHT = 4, mais cela ne s'applique pas nécessairement à l'Est de l'Ontario; par conséquent, la valeur par défaut est de 8.*

La meilleure estimation pour R_{HT} est 4 Bq • L^{-1} HTO par Bq • m^{-3} HT, tel qu'indiqué dans le document intitulé *1994 HT chronic release experiment at Atomic Energy of Canada Limited (AECL)'s Chalk River Laboratories (CRL)* (Davis *et coll.*, 1995a, b; Davis et Bickel, 2000; Spencer *et coll.*, 1996). Cette valeur est plus élevée d'un facteur 2 que la valeur estimée par Neil (1992) en se basant sur des preuves indirectes. Elle est incertaine parce que les concentrations de HTO mesurées sur le terrain étaient très proches des valeurs de fond et parce que les concentrations pourraient ne pas avoir atteint l'équilibre avant la fin de la période d'étude. De plus, la valeur pourrait ne pas être directement applicable à d'autres sites d'installations nucléaires lorsque les sols sont très différents de ceux des Laboratoires de Chalk River (LCR) pour ce qui est des propriétés qui contrôlent le dépôt de HT et l'oxydation (teneur en eau, porosité du sol et distribution des microorganismes). En outre, on ne dispose que de peu d'information sur la manière dont les valeurs de R_{HT} sont réparties. Une distribution normale logarithmique est supposée, étant donné que de nombreux paramètres exprimés comme des rapports font l'objet d'une distribution normale logarithmique et que Neil (1992) montre une distribution qui est presque une distribution normale logarithmique. De même, la valeur de 4 Bq • L^{-1}/(Bq • m^{-3}) est la moyenne géométrique pour R_{HT} et l'écart type géométrique est établi à 1,5, en supposant un intervalle de confiance de 95 % à partir d'environ 1,8 à 9 Bq • L^{-1}/(Bq • m^{-3}). Une valeur de 4 est recommandée par défaut pour les sites dont le sol est semblable à celui des LCR (loam sableux), pour les autres types de sol, une valeur de 8 Bq • L^{-1}/(Bq • m^{-3}), que l'on estime être prudente dans tous les cas (Davis et Bickel, 2000) doit être utilisée.

L'humidité absolue, H_a, doit être une valeur propre au site à utiliser dans l'Équation 3.2. Dans les programmes de surveillance sur place du tritium pour les concentrations de tritium dans l'air, H_a n'est pas mesurée directement habituellement, mais est souvent dérivée d'une quantité d'eau extraite du tamis moléculaire et du volume d'air échantillonné (Hart, 2008). En l'absence de données locales, des valeurs régionales par défaut sont indiquées au Tableau 3.4 pour différentes raisons. Les valeurs varient considérablement en fonction du temps et doivent être choisies pour correspondre à la manière dont le H_a apparaît dans un modèle. Par exemple, il convient d'utiliser une moyenne pour calculer la conversion du HT au HTO dans l'air pendant une période sans neige (Équation 1.8). Des moyennes de temps plus courtes conviennent davantage au Ha utilisé dans la modélisation de la conversion du HT de l'air au HTO dans les plantes.

Le facteur f_{oxyd} est la fraction de l'année lorsque le sol n'est pas gelé ou recouvert de neige. Il est appliqué afin de tenir compte de la diminution des taux d'oxydation du HT et de réémission du HTO en hiver. Les données propres au site pour ce paramètre doivent être utilisées s'il en existe. Pour l'Ontario, dans la région de Chalk River et Pembroke et pour le Québec près de Gentilly-2 (G-2), la valeur recommandée pour f_{oxyd} est de 0,67, d'après la période exempte de gel signalée dans la base de données normale du climat d'Environnement Canada pour les stations météorologiques situées à proximité. Pour le Sud de l'Ontario (près de Bruce Power, de la centrale nucléaire de Pickering et Darlington) et pour Point Lepreau, f_{oxyd} doit être de 0,75.

Tableau 3.4 : Humidité absolue, moyenne de Ha ($L \cdot m^{-3}$) pour différentes saisons aux stations proches des installations CANDU canadiennes (tiré de Hart, 2008)

Site	Moyenne annuelle	Moyenne pour la période sans neige	Moyenne pour la saison de croissance
Îles de Toronto (Pickering)	0,0069	0.0089	0,012
Trenton (Darlington)	0,0069	0,0089	0,012
Wiarton (Bruce)	0,0066	0,0085	0,011
Ottawa (LCR)	0,0050	0,0080	0,010
Ville de Québec (Gentilly-2)	0,0047	0,0076	0,010
Saint John (Point Lepreau)	0,0054	0,0075	0,010

3.2.2 Oxydation du sol par le CH_4 tritié

La teneur en méthane (CH_4) de l'atmosphère est très élevée, comparativement à d'autres gaz présents à l'état de trace. Le CH_4 s'associe au H_2 et au CO, contribuant environ à 1 % du cycle du carbone atmosphérique total, tel qu'estimé par Ehhalt (1974).

L'oxydation du CH_4 entraîne la formation de dioxyde de carbone (CO_2) et d'eau. La grande majorité de l'oxydation du méthane se produit en haute atmosphère par réaction photochimique avec le OH (Burger, 1979; Freyer, 1977; Hart, 2008). Une certaine partie de l'oxydation du méthane est assurée par des microorganismes méthanotrophes dans les sols, en condition aérobie (Mancinelli, 1995), tel qu'indiqué par l'équation suivante :

$$CH_4 + 2\,O_2 \longrightarrow CO_2 + 2\,H_2O \qquad \text{Équation 3.5}$$

Les échanges isotopiques entre le tritium et les atomes d'hydrogène ordinaire du méthane peuvent produire du méthane tritié qui, à son tour, peut être transformé en HTO. Le procédé inverse est effectué par des bactéries méthanogènes, en condition anaérobie (Zehnder et Brock, 1979), et le HTO peut être reconverti en méthane tritié.

L'oxydation du méthane peut également se produire par réduction du sulfate par les microorganismes durant le métabolisme anaérobie (Mancinelli, 1995), tel qu'indiqué dans l'équation suivante :

$$2CH_4 + SO_4^{2-} \longrightarrow 4H_2 + 2CO_2 + H_2S \qquad \text{Équation 3.6}$$

La réduction anaérobie du sulfate n'existe que dans les milieux où du sulfate est présent et tend à prédominer dans les systèmes aquatiques (Mancinelli, 1995). Dans ce processus, le méthane tritié peut être converti en HT et en HTS gazeux.

Durant la formation et l'oxydation du méthane, on s'attend à ce que les atomes de tritium plus lourds réagissent plus lentement et qu'ils soient plus fortement liés que les isotopes plus légers de l'hydrogène, ce qui entraîne une séparation isotopique par les microorganismes du sol.

Topp et Pattey (1997), Born *et coll.* (1990) et Crutzen (1991) indiquent qu'en moyenne 7 % (dans une plage de 1 % à 15 %) du méthane rejeté dans le monde est oxydé au niveau du sol par des microorganismes dans le sol, avec formation subséquente d'eau (et, dans certains cas, de HTO), tel qu'indiqué par l'Équation 3.4. Comme ces valeurs représentent des moyennes très vastes, et que l'on ne tient pas compte de la proximité de la source de CH_4, les fractions d'oxydation locale seront probablement moins élevées. Kim *et coll.* (2004) indiquent que les fractions d'oxydation dans un rayon de 10 km de la source sont de 0,24 % pour Pickering et Darlington et de 0,1 % pour Bruce Power, G-2 et Point Lepreau. Ainsi, une fraction d'oxydation équivalente à 0,3 % peut être supposée de manière prudente et appliquée à l'oxydation du CH_4 locale au niveau du sol.

3.3 Comportement du tritium dans les panaches ou rejets atmosphériques

3.3.1 Formes du tritium

Le tritium existe sous différentes formes dans les panaches atmosphériques émis par les installations nucléaires, les plus importantes étant l'eau tritiée (HTO) et l'hydrogène gazeux tritié (HT). La proportion relative de ces différentes formes du tritium atmosphérique autour d'une installation dépend des proportions rejetées par l'installation et des processus de chimie atmosphérique, la plus importante étant la teneur en vapeur d'eau dans l'air (Momoshima *et coll.*, 2007). Comme la saturation de la vapeur d'eau dépend de la température, la teneur en vapeur d'eau et, par conséquent, la conversion du HT en HTO (voir la Section 3.2) sera plus importante en été qu'en hiver.

La forme que prend le tritium est importante pour la répartition environnementale et la dose de rayonnement reçue par les personnes qui vivent à proximité d'une installation. Le HT gazeux réagit plus lentement que le HTO avec les autres fractions environnementales. La dose de rayonnement qui est associée au HT est très faible comparativement à celle du HTO, parce qu'il n'est que très peu absorbé par le corps. Le HTO se comporte comme l'eau dans l'atmosphère, il se répartit facilement dans le sol et dans les plantes et entraîne une dose de rayonnement plus importante dans le corps. Comme le précisent Spencer et Vereecken Sheehan (1994), le HTO est généralement la forme chimique la plus abondante dans les panaches émis par les installations nucléaires.

3.3.2. Caractéristiques des rejets de tritium par les installations nucléaires

En plus du type de tritium rejeté, la dispersion atmosphérique des contaminants dépend de nombreux facteurs propres à l'installation, comme le nombre de cheminées, la hauteur des cheminées, la vitesse d'évacuation, la température de sortie des gaz, l'humidité de l'air, la taille et l'emplacement des bâtiments adjacents, la turbulence atmosphérique locale, les vents

et la topographie locale. Il est important de savoir si les cheminées émettent de manière continue ou intermittente et si les quantités rejetées sont constantes ou variables. Comme ces facteurs varient d'une installation à une autre, il est difficile de généraliser leur importance relative.

Les caractéristiques de rejets spécifiques sont plus importantes lorsqu'on examine les rejets à court terme et que l'on essaie de prévoir les concentrations dans l'air pour cette période. Elles peuvent être particulièrement importantes pour les récepteurs en champ proche. Cependant, elles sont moins importantes lorsqu'on examine les concentrations annuelles moyennes à long terme, qui présentent de l'intérêt pour la détermination des impacts de l'installation associés aux rejets de tritium dans l'air. Dans la section suivante, on examine la manière dont les facteurs propres aux installations influent sur la dispersion atmosphérique du tritium.

3.3.3 Dispersion des panaches de tritium

3.3.3.1 Processus de dispersion normale

Les panaches de tritium subissent des processus de dispersion semblables à d'autres panaches de contaminants. Les rejets de HT ou de HTO se dispersent de manière semblable. Le panache s'élève au-dessus des cheminées jusqu'à ce qu'il soit déplacé par le vent, pour s'étendre ensuite horizontalement ou verticalement selon le cas. L'élévation finale du panache dépend des conditions atmosphériques et des caractéristiques du rejet (diamètre de la cheminée, vitesse de sortie, température). De façon générale, l'élévation est plus importante dans des conditions de faible vent et est plus faible lorsque les vents sont forts.

L'étendue ou la dispersion horizontale ou verticale du panache dépend des conditions atmosphériques. La dispersion a tendance à être plus importante par temps calme et clair, le jour, et moins importante la nuit par temps calme et clair. Le jour, on parle de conditions instables ou de convections et la nuit on parle de conditions stables ou d'inversions. Les vents modérés ou forts peuvent causer une dispersion de niveau intermédiaire. Ce type de dispersion est connu sous le nom d'équilibre indifférent. Elle est la plus courante et a tendance à avoir un effet dominant sur les concentrations de panache moyennes à long terme.

Le profil latéral de la concentration à l'intérieur d'un panache qui se disperse se rapproche d'une courbe en cloche symétrique, connue sous le nom de loi de Gauss. La loi de Gauss est fondée sur différents modèles de dispersion numérique employés pour prévoir la dispersion des panaches de contaminants. Le calcul du taux de dispersion pour la loi de Gauss, qui dépend de la stabilité atmosphérique, est basé sur les travaux de Pasquill (1962). Dans la direction verticale, la loi de Gauss s'avère une bonne approximation dans des conditions neutres, mais convient moins bien aux conditions stables et instables. Une innovation relativement récente dans les modèles de dispersion consiste à remplacer la loi de Gauss par une distribution plus complexe pour ces conditions. Une autre innovation relativement récente est l'utilisation de méthodes plus complexes visant à estimer le taux de dispersion en fonction de la stabilité atmosphérique et des conditions de terrain. L'Environmental Protection Agency des États-Unis (US EPA) propose un modèle de dispersion de nouvelle génération, AERMOD, qui tient compte de ces effets.

Le modèle de dispersion recommandé actuellement au Canada consiste à évaluer l'exposition à long terme aux rejets de tritium des installations nucléaires, et est précisé dans la norme N288.1-08 (CSA, 2008). Comme la plupart des modèles de dispersion, celui-ci est fondé sur la loi de Gauss. Il calcule les concentrations atmosphériques à long terme à l'aide d'une méthode à moyenne de zone, semblable à celle intégrée dans la version à long terme d'ISC-LT (*Industrial Source Complex model*) de l'EPA des États-Unis, un prédécesseur d'AERMOD. Dans cette méthode, les données météorologiques pour le site à l'étude sont classées en 16 secteurs de direction des vents différents et analysées pour déterminer la fréquence des différentes catégories de vitesse de vent et de stabilité atmosphérique. Cette information est ensuite utilisée pour calculer la dispersion à moyenne pondérée et la concentration au niveau du sol par secteur.

Le modèle de panache gaussien à moyenne de zone est formulé dans la norme N288.1-08 comme un facteur de dispersion ou de transfert $(P_{01})_j$, qui est multiplié par le taux de rejet de tritium pour donner la concentration de tritium dans l'air au niveau du sol dans le secteur de vent j à une distance x du point de rejet. Mathématiquement, $(P_{01})_j$ est calculé comme suit :

$$(P_{01})_j = [(2/\pi)^{1/2} /(x\,\Delta\theta)] \sum [F_{ijk}\, D_k \exp(-H_{ik}^2 / 2\Sigma_{zi}^2) / (u_k\, \Sigma_{zi})] , \qquad \text{Équation 3.7}$$

où :

- $(P_{01})_j$ est le facteur de transfert au niveau du sol pour le récepteur j ($s \cdot m^{-3}$)
- x est la distance entre la source et le récepteur j (m)
- $\Delta\theta$ est l'étendue du secteur au-dessus duquel le panache s'étend (en radians)
- F_{ijk} est la fréquence à triple point d'occurrence pour la classe de stabilité i et la classe de vitesse des vents k lorsque le vent souffle dans le secteur où se trouve le récepteur j
- D_k est le facteur qui tient compte de la désintégration et de la croissance de la vitesse des vents de classe k
- H_{ik} est la hauteur de rejet efficace pour la classe de stabilité i et la classe de vitesse des vents k (m)
- Σ_{zi} est le paramètre de dispersion verticale pour la classe de stabilité i, y compris l'étendue attribuable à l'effet de sillage (m), où z désigne l'axe vertical
- u_k est la vitesse moyenne du vent pour la classe de vitesse k ($m \cdot s^{-1}$)

La hauteur de rejet efficace H_{ik} est la hauteur physique de la cheminée, ajustée au besoin pour tenir compte des effets de l'élévation du panache dus à la poussée thermique ou au moment (Section 3.3.3.3) et de l'effet de cheminée ou du sillage aérodynamique (Section 3.3.3.4). La norme N288.1-08 fournit les procédures d'ajustement détaillées.

Le terme de désintégration et de croissance D_k se réduit à une désintégration simple dans le cas du tritium, étant donné qu'il n'y a pas de produit de filiation radioactif. Ainsi $D_k=\exp(-\lambda \cdot (x/u_k))$, où λ est la constante de désintégration de $1{,}79 \times 10^{-9}\ s^{-1}$. Le temps de trajet jusqu'à la distance x est x/u_k. Étant donné que les récepteurs qui nous intéressent se trouvent généralement dans un rayon de quelques kilomètres, à des vitesses de vent courantes d'environ 2 m/s, le tritium réside pendant environ 30 minutes dans la zone d'intérêt.

Grâce au calcul numérique que nous connaissons aujourd'hui, des modèles plus détaillés qui déterminent les concentrations à long terme en effectuant des calculs de la dispersion à chaque heure du registre météorologique sont maintenant disponibles, comme dans AERMOD. Comme nous l'avons mentionné précédemment, AERMOD fournit également des méthodes plus raffinées pour prévoir la dispersion dans des conditions atmosphériques stables et instables. Cependant, étant donné que l'exposition à long terme a tendance à être dominée par des conditions neutres plutôt que par des conditions stables ou instables, ces perfectionnements n'ont qu'un effet négligeable sur la prévision des concentrations à long terme.

La preuve disponible grâce à la surveillance aux installations nucléaires canadiennes (Chouhan et Davis, 2001) montre que le modèle gaussien à moyenne de zone fonctionne bien. Il permet de prévoir le tritium annuel moyen avec un facteur de 2, avec un biais légèrement élevé en moyenne.

Les processus atmosphériques qui peuvent avoir une incidence sur la dispersion du tritium dans certaines situations sont examinés dans les sections suivantes. Ils sont illustrés à la Figure 3.2.

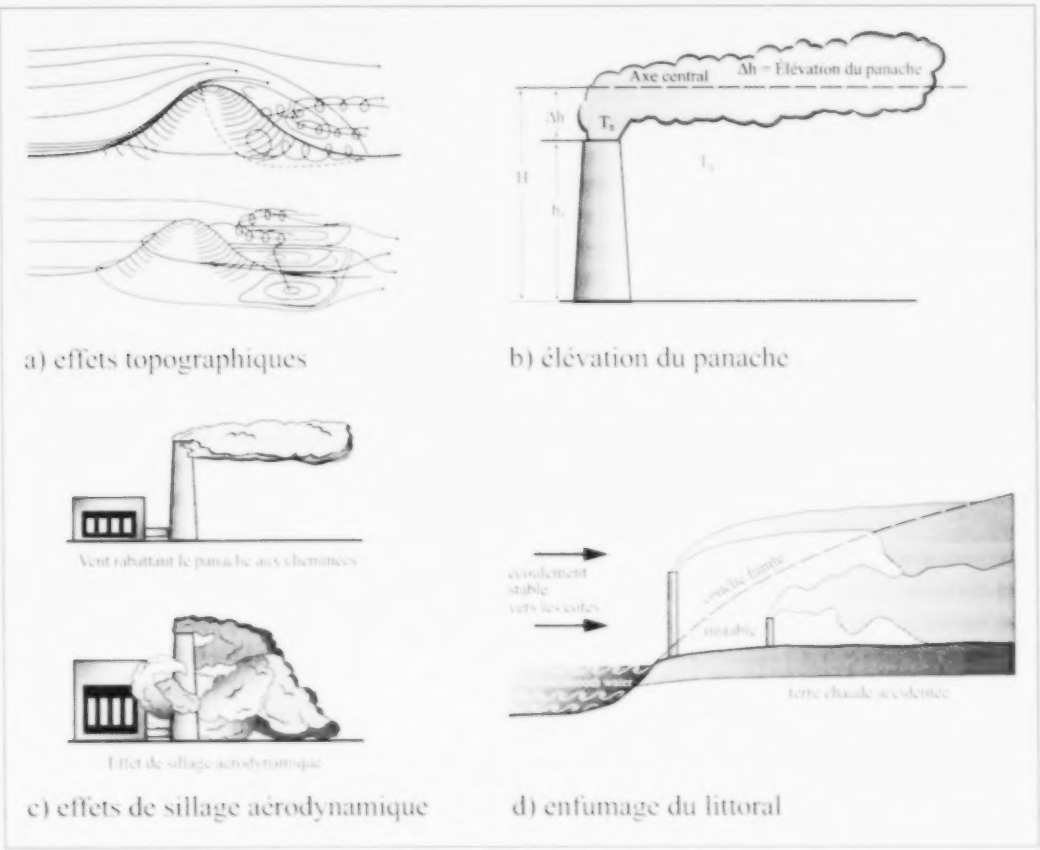
3.3.3.2 Effets de la topographie

Lorsqu'un panache qui se disperse arrive sur une colline, il est défléchi et surmonte la colline ou la contourne selon les conditions atmosphériques. La déflexion est seulement partielle et à mesure que le panache passe au-dessus de la colline, sa hauteur au-dessus du sol est inférieure à celle que l'on observerait en l'absence de colline, ce qui donne des concentrations au sol plus élevées. Les méthodes gaussiennes simples ne représentent pas de manière explicite la dispersion autour des collines et doivent être utilisées avec prudence lorsqu'il y a de grosses collines entre la source et le récepteur.

Cet aspect peut être important dans le cas des installations situées dans des environnements plus complexes, comme Chalk River, ou peu important dans le cas des installations situées dans des milieux relativement plats, comme Gentilly. Les modèles de qualité de l'air réglementaires les plus récents permettent de mieux tenir compte des conditions avoisinantes complexes, ce qui peut être important pour certaines installations.

Lorsqu'il y a un écart important dans la rugosité du sol autour d'une source, l'utilisation d'une rugosité uniforme moyenne peut surestimer ou sous-estimer la concentration à certains endroits, selon la configuration du terrain. Si l'on tient compte de la rugosité du terrain autour des installations nucléaires canadiennes, la norme N288.1 recommande une valeur plus faible, qui sera généralement prudente avec une seule exception. Dans le cas des récepteurs près de l'eau, la dispersion verticale est surestimée en supposant une valeur de rugosité pour les surfaces terrestres.

Figure 3.2 : Illustration des processus de dispersion du panache atmosphérique

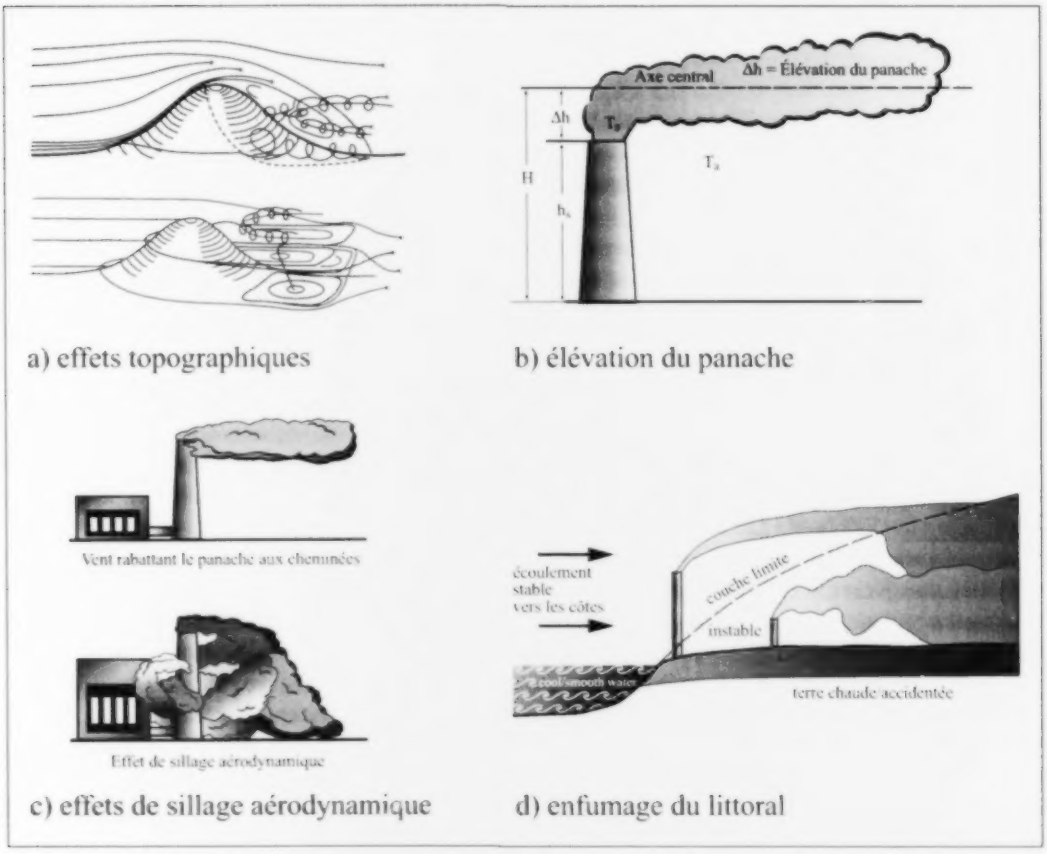


3.3.3.3 Élévation du panache

Les panaches de tritium s'élèvent parfois suite à un rejet des cheminées, en raison de la poussée thermique ou du moment. Tel qu'indiqué par Briggs (1971), la hauteur de rejet efficace H_e peut être ajustée afin de tenir compte de l'élévation du panache, d'après le mécanisme dominant. Dans la plupart des cheminées de réacteur, la température des gaz est légèrement supérieure à la température ambiante. Par conséquent, la poussée thermique est négligeable en été. Elle peut être importante en hiver; cependant, l'hypothèse voulant qu'il n'y aucune poussée pendant l'année est prudente en hiver.

L'élévation de panache prend fin lorsque la force directrice de la chaleur du panache ou du moment est dissipée, habituellement sur quelques dizaines ou centaines de mètres. L'élévation est contrecarrée par les effets de cheminée ou le sillage aérodynamique, qui entraîne le panache vers le bas (Section 3.3.3.4). Tel qu'indiqué dans la norme N288.1, les calculs qui ne tiennent pas compte de l'élévation du panache ont tendance à surestimer la

Figure 3.2 : Illustration des processus de dispersion du panache atmosphérique



3.3.3.3 Élévation du panache

Les panaches de tritium s'élèvent parfois suite à un rejet des cheminées, en raison de la poussée thermique ou du moment. Tel qu'indiqué par Briggs (1971), la hauteur de rejet efficace H_h peut être ajustée afin de tenir compte de l'élévation du panache, d'après le mécanisme dominant. Dans la plupart des cheminées de réacteur, la température des gaz est légèrement supérieure à la température ambiante. Par conséquent, la poussée thermique est négligeable en été. Elle peut être importante en hiver; cependant, l'hypothèse voulant qu'il n'y aucune poussée pendant l'année est prudente en hiver.

L'élévation de panache prend fin lorsque la force directrice de la chaleur du panache ou du moment est dissipée, habituellement sur quelques dizaines ou centaines de mètres. L'élévation est contrecarrée par les effets de cheminée ou le sillage aérodynamique, qui entraîne le panache vers le bas (Section 3.3.3.4). Tel qu'indiqué dans la norme N288.1, les calculs qui ne tiennent pas compte de l'élévation du panache ont tendance à surestimer la

concentration au niveau du sol de l'ordre de moins de 30 % dans la plupart des installations nucléaires. Une exception notable est l'incinérateur de Bruce, où la température des gaz de cheminée est de 153 °C dans les élévations importantes de panache.

La condensation du HTO gazeux peut se produire à la cheminée ou près de la cheminée, à mesure que les gaz chauds se refroidissent et perdent de l'humidité, particulièrement en hiver. L'eau recueillie sur les parois de la cheminée et sur le toit proche du point de rejet peut contenir des concentrations élevées de tritium. Les eaux de ruissellement peuvent avoir un effet important sur la concentration dans l'eau interstitielle du sol et dans les eaux souterraines près de la cheminée.

3.3.3.4 Sillage aérodynamique aux cheminées et aux bâtiments

Selon la hauteur et la taille de la cheminée, le mode principal de dispersion peut être modifié par les effets aérodynamiques qui se produisent près des bâtiments adjacents et de la cheminée. Des zones de turbulence (appelées sillages aérodynamiques) peuvent être créées sur les côtés des structures lorsque le vent souffle autour d'elles. Un panache de tritium peut, au moins dans certaines conditions de vent, être poussé vers le bas, ce qui descend le panache plus près du sol. Cet effet, connu sous le nom de rabattement du panache peut être important pour les concentrations à court terme et à long terme du panache. Si une partie du tritium est présente sous forme de particules ou de gouttelettes en suspension dans l'air, ces particules subiront un tassement gravitationnel qui peut également amener le panache quelque peu vers le bas. Cela donne des concentrations de contaminants plus élevées dans la zone proche.

Le modèle indiqué dans la norme N288.1 tient compte des effets de vent rabattant. Il utilise une méthode simplifiée basée sur une méthode mise au point par Huber (1984), dans laquelle la hauteur de rejet efficace (H_{ik}) est réduite d'une valeur qui dépend du diamètre intérieur de la cheminée et de la vitesse de sortie, ainsi que de la hauteur des bâtiments adjacents, alors que la dispersion du panache est améliorée d'une valeur qui est calculée d'après la coupe transversale des bâtiments adjacents. Des paramètres de cheminée et de bâtiment pertinents sont indiqués au Tableau 3.5. Si la vitesse de sortie dépasse 1,5 fois la vitesse du vent, il n'y aura pas de vent rabattant à l'extrémité de la cheminée. Cependant, le vent rabattant à l'abri du bâtiment peut être présent selon la hauteur de cheminée et les dimensions du bâtiment. Si la hauteur de cheminée est ajustée de manière à ce que le vent rabattant à l'extrémité de cheminée dépasse 2,5 fois la hauteur des bâtiments adjacents, l'entraînement du panache par les bâtiments ne se produira pas. Un entraînement total peut être supposé raisonnablement lorsque la hauteur de la cheminée est inférieure à la hauteur des bâtiments adjacents, ce qui est courant dans de nombreux sites canadiens où se trouvent des réacteurs.

Il est souvent difficile de choisir la coupe transversale, étant donné que les rejets de la plupart de sites nucléaires sont influencés par différents bâtiments. Les modèles de dispersion de nouvelle génération ont remplacé cette méthode par une méthode un peu plus complexe (algorithme PRIME).

Tableau 3.5 : Paramètres de cheminée et de bâtiment pertinents pour la dispersion atmosphérique du tritium sur les sites des réacteurs canadiens (tiré de Hart, 2008)

Site	Hauteur de cheminée (m) (h_s)	Hauteur du bâtiment adjacent (m) (h_b)	Diamètre intérieur de la cheminée* (m) (D)	Vitesse de sortie à la cheminée* (m/s) (W_o)	Coupe transversale du bâtiment adjacent (m^2)
Pickering	41	43	1,27	12,9	1 850
Darlington	59	70	2,79	19,3	2 500
Gentilly-2	37	46	-	-	3 000
Point Lepreau	50	-	-	-	3 000
Bruce	-	-	2,32	16,2	1 950
Incinérateur de Bruce	21	13,7	0,41	13,1	1 350
LCR	46	0	-	-	0
LCR (^{99}Mo)	61	<<61	-	-	1 500

* *Les cheminées de réacteur ont généralement un diamètre intérieur se situant entre 1 et 3 m, et la vitesse de sortie se situe dans la plage de 10 à 20 m/s; les paramètres indiqués se rapportent à la cheminée la plus haute lorsque plusieurs cheminées se trouvent dans l'installation.*

** *À Bruce, certaines cheminées sont plus basses que le bâtiment-réacteur, alors que d'autres sont plus hautes; on suppose que $h_s < h_b$, alors le panache est entièrement entraîné.*

Remarque

$H_k = h_s - (\Delta hd)_k - (\Delta h_{en})_k$ pour un panache flottant neutre

$(\Delta h_d)_k = 2\,(1.5 - w_o/u_k) \cdot D$

$(h')_k = h_s - (\Delta h_d)_k$

$(\Delta h_{en})_k = 1.5\, h_b - 0.6\,(h')_k$

Un autre facteur à considérer est que certaines installations nucléaires canadiennes rejettent du tritium dans l'atmosphère par différentes cheminées ou orifices d'aération. Plutôt que de modéliser chaque cheminée séparément, les rejets d'une installation donnée sont souvent évalués approximativement en les combinant à une source virtuelle située au centre de l'installation. Les erreurs de prévision qui découlent de cette hypothèse sont faibles (10 % ou moins à la centrale nucléaire de Pickering). De plus, la méthode de modélisation de la norme N288.1 suppose un taux d'émission continu et uniforme et utilise des conditions atmosphériques moyennes à long terme. Ceux-ci ne s'appliquent pas lorsque les rejets des installations dépassent environ 1 % de la limite opérationelle dérivée (LOD) annuelle en quelques heures, ou dans des conditions météorologiques néfastes (faible dispersion) (CSA 2008).

Les modèles de nouvelle génération, comme AERMOD, calculent la dispersion heure par heure à l'aide des données météorologiques horaire, plutôt que d'utiliser une pondération statistique pour calculer les concentrations moyennes à long terme. Cela permet d'estimer les expositions potentielles pour différents temps moyens (jusqu'à une heure) dans

différentes conditions météorologiques et pour différents taux de rejets. Cette capacité est importante lorsque nous examinons les expositions intenses à court terme, mais moins dans le cas des expositions moyennes à long terme.

3.3.3.5 Fumigation du littoral

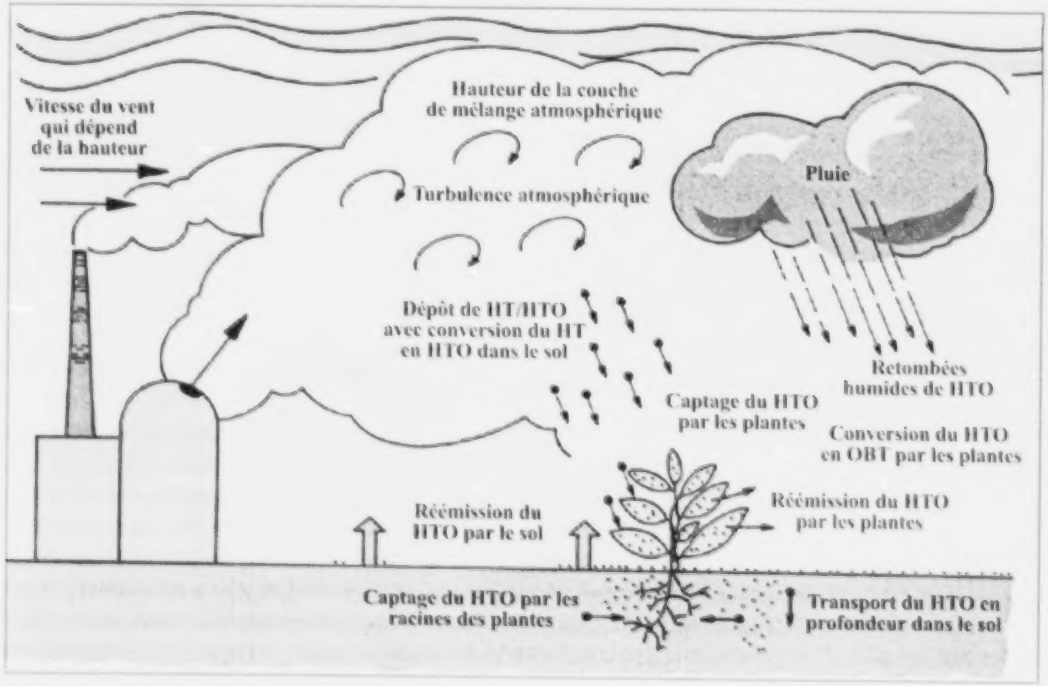
Dans le cas des cheminées qui se trouvent près d'un grand plan d'eau et sont suffisamment hautes pour être touchées par le sillage aérodynamique, l'enfumage du littoral est un autre phénomène pouvant altérer le mode fondamental de dispersion et entraîner le panache plus près du sol. Ce phénomène peut se produire lorsque les vents sont faibles, lors de matins clairs lorsque le vent se dirige vers les côtes. Tôt le matin, les conditions atmosphériques sont stables. Plus tard en avant-midi, elles demeurent stables au dessus de l'eau mais commencent à devenir instables sur les terres à mesure que le soleil chauffe la surface de la terre. À ce moment-là, le panache peut d'abord être émis dans un milieu stable avec dispersion limitée et élévation de panache limitée. Lorsqu'il atteint la couche instable au-dessus du terrain, à la limite de la couche d'inversion thermique, le taux de dispersion augmente rapidement, ce qui descend le panache vers le sol plus rapidement et augmente les concentrations qui autrement seraient moins élevées.

L'enfumage du littoral peut être important dans le cas des expositions à court terme à un panache de tritium rejeté par une cheminée haute. Bien que ce processus ne soit pas visé par la norme N288.1, l'enfumage de la ligne de côte est une condition relativement peu fréquente et la plupart des installations nucléaires possèdent des cheminées relativement basses. Les cheminées ont généralement une hauteur de 30 à 60 m et une hauteur de rejet efficace encore plus basse, particulièrement lorsque la hauteur des bâtiments adjacents cause un entraînement substantiel du panache. Les hauteurs de rejet efficaces sont généralement inférieures à la hauteur de la couche limite d'inversion thermique (CLIT), à une certaine distance des sites nucléaires canadiens, à l'intérieur des terres. Ainsi, l'enfumage de la ligne de côte ne devrait pas avoir d'effet important sur les concentrations de tritium à long terme.

3.3.4 Dépôts secs et humides

Une fois dans l'atmosphère, le tritium peut se déposer sur la végétation, le sol ou d'autres surfaces. Le dépôt peut se produire par différents procédés, tel qu'illustré à la Figure 3.3, tirée de Galeriu *et coll.* (2007). Le tritium peut soit être capté directement du panache par échange de vapeur dans le sol et les plantes (processus connu sous le nom de retombées sèches), ou peut être capté du panache par des gouttes de pluie et se déposer avec les chutes de pluie (processus connu sous le nom de retombées humides ou lessivage). La Figure 3.3 indique également que le HTO peut être réémis du sol ou des plantes vers l'atmosphère.

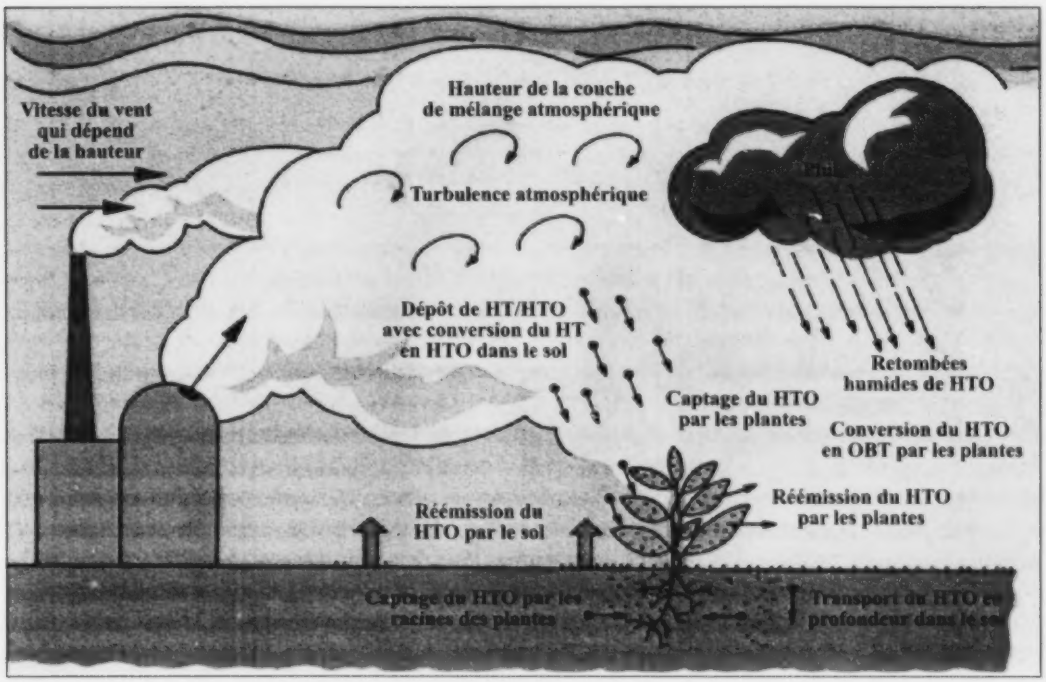
Figure 3.3 : Processus d'intégration du tritium dans l'environnement (Galeriu *et coll.*, 2007)



Un autre mécanisme de transfert du tritium d'un panache atmosphérique vers le sol est la condensation de la vapeur d'eau tritiée à la surface du sol (formation de rosée). Bunnenberg *et coll.* (1986) ont découvert que, dans certaines conditions météorologiques, il existe un échange mesurable de vapeur d'eau tritiée entre l'atmosphère et le sol. Ces auteurs estiment que la voie de condensation est particulièrement importante dans le cas des rejets près du sol. Dans le cas d'un rejet accidentel par une source de faible activité, dans des conditions appropriées, la condensation pourrait entraîner les retombées de HTO les plus importantes. De façon générale, il s'agit là d'un mécanisme moins important que l'échange de vapeur et que le lessivage.

Le transfert du tritium de l'air vers l'eau du sol, les eaux souterraines et les eaux de surface est examiné en détail à la Section 4.0, comme étant un aspect du comportement du tritium dans le cycle de l'eau. On le mentionne dans le contexte de l'appauvrissement du panache atmosphérique. La méthode de modélisation de la norme N288.1 ignore de manière prudente l'appauvrissement du panache atmosphérique causé par les retombées humides ou sèches. Cependant, l'effet de l'appauvrissement de la concentration atmosphérique du tritium attribuable à ces procédés a été évalué en calculant les concentrations avec et sans appauvrissement pour des groupes critiques potentiels à différentes centrales nucléaires du Canada (Hart, 2008). Les calculs ont été effectués pour deux groupes critiques potentiels à chaque endroit, l'un se trouvant près des réacteurs et l'autre plus éloigné. Des valeurs moyennes ont été adoptées pour les paramètres des retombées qui correspondent à l'intensité

Figure 3.3 : Processus d'intégration du tritium dans l'environnement (Galeriu *et coll.*, 2007)



Un autre mécanisme de transfert du tritium d'un panache atmosphérique vers le sol est la condensation de la vapeur d'eau tritiée à la surface du sol (formation de rosée). Bunnenberg *et coll.* (1986) ont découvert que, dans certaines conditions météorologiques, il existe un échange mesurable de vapeur d'eau tritiée entre l'atmosphère et le sol. Ces auteurs estiment que la voie de condensation est particulièrement importante dans le cas des rejets près du sol. Dans le cas d'un rejet accidentel par une source de faible activité, dans des conditions appropriées, la condensation pourrait entraîner les retombées de HTO les plus importantes. De façon générale, il s'agit là d'un mécanisme moins important que l'échange de vapeur et que le lessivage.

Le transfert du tritium de l'air vers l'eau du sol, les eaux souterraines et les eaux de surface est examiné en détail à la Section 4.0, comme étant un aspect du comportement du tritium dans le cycle de l'eau. On le mentionne dans le contexte de l'appauvrissement du panache atmosphérique. La méthode de modélisation de la norme N288.1 ignore de manière prudente l'appauvrissement du panache atmosphérique causé par les retombées humides ou sèches. Cependant, l'effet de l'appauvrissement de la concentration atmosphérique du tritium attribuable à ces procédés a été évalué en calculant les concentrations avec et sans appauvrissement pour des groupes critiques potentiels à différentes centrales nucléaires du Canada (Hart, 2008). Les calculs ont été effectués pour deux groupes critiques potentiels à chaque endroit, l'un se trouvant près des réacteurs et l'autre plus éloigné. Des valeurs moyennes ont été adoptées pour les paramètres des retombées qui correspondent à l'intensité

des précipitations observées. Les résultats de cette étude indiquent que la modélisation sans appauvrissement a tendance à surestimer les concentrations d'environ 10 % près de la source (à 1 ou 2 km) et de 20 % à 35 % à des distances plus grandes (4 à 10 km).

3.3.5 Modèles de dispersion de future génération

L'EPA des États-Unis (2003) a réalisé une évaluation globale des différences entre les modèles de dispersion antérieurs (p. ex. ISC) avec des modèles de la nouvelle génération, comme AERMOD. Comme le modèle souvent employé pour prévoir les concentrations de contaminants dans les installations nucléaires canadiennes est semblable à l'ISC, les résultats de cette évaluation peuvent être utilisés pour fournir des commentaires généraux concernant les différences entre les modèles semblables à l'ISC et les modèles réglementaires plus avancés, comme AERMOD. L'EPA des États-Unis (2003) a trouvé que par rapport au modèle ISCST3, AERMOD contient actuellement des algorithmes nouveaux ou améliorés pour les cas suivants :

- dispersion dans les couches limites convectives et stables;
- retombées sèches et humides;
- élévation du panache et poussée;
- pénétration du panache dans les inversions élevées;
- traitement des sources près de la surface et élevées et des sources au niveau de la surface;
- calcul des profils verticaux du vent, de la turbulence et de la température;
- traitement « continu » des récepteurs pour tous les types de terrain allant de la surface à une altitude plus élevée que la hauteur du panache (p. ex. terrain simple, intermédiaire et complexe).

Dans les cas où il n'y a pas de vent rabattant et où le terrain est plat et simple, le modèle AERMOD a tendance à prévoir des concentrations maximales semblables à celles de l'ISC. Lorsque le sillage aérodynamique est un facteur important dans l'analyse de dispersion atmosphérique, le modèle AERMOD prévoit encore des concentrations maximales et des concentrations de cavité maximales qui sont très semblables à l'ISC. Des différences plus importantes entre les deux modèles se produisent lorsqu'il y a des collines. Le modèle AERMOD a tendance à produire des concentrations maximales plus faibles que la technique de balayage en ISC. De façon générale, l'EPA des États-Unis (2003) conclut que le modèle AERMOD est plus performant que ISC (ST3 et PRIME).

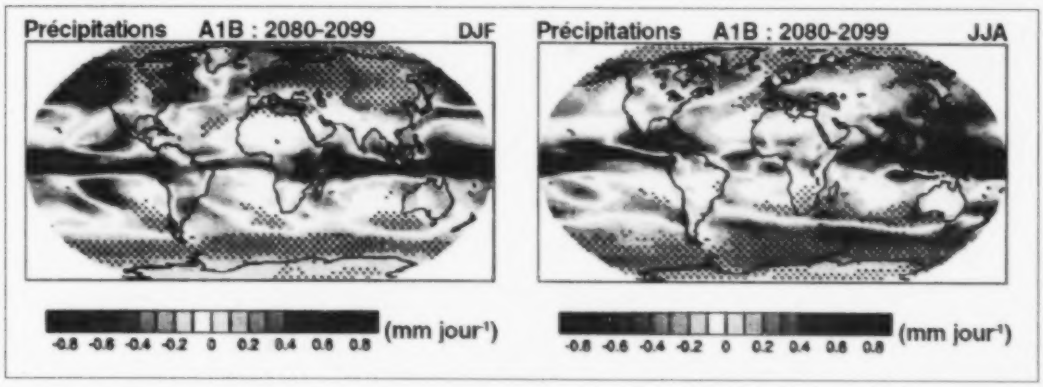
3.4 Impact des changements climatiques sur la dispersion du tritium

Depuis quelques années, on s'intéresse de plus en plus à l'incidence des changements climatiques sur les événements météorologiques, les processus de chimie atmosphérique et la qualité future de l'air. Les études indiquent que les émissions continues de gaz à effet de serre (GES) qui atteignent les taux actuels ou qui les dépassent entraîneront un réchauffement encore plus important et pourraient causer de nombreux changements dans le climat mondial au cours du XXI^{e} siècle, changements beaucoup plus importants que ceux observés au XX^{e} siècle (IPCC, 2007, MacCracken, 2008). Ces facteurs pourraient influencer la dispersion atmosphérique des radionucléides rejetés par les installations nucléaires.

On fait de plus en plus confiance aux modèles de réchauffement prévus et aux autres prévisions à l'échelle régionale, y compris les changements dans les vents, les précipitations et certains événements climatiques extrêmes. Certains facteurs, comme les changements dans les précipitations, l'humidité absolue de l'air et la teneur en humidité du sol seront particulièrement importants pour le comportement du tritium dans l'atmosphère, étant donné que la répartition du tritium entre l'air et les eaux de surface ou l'eau du sol dépend de ces paramètres.

Selon IPCC (2007), les prévisions relatives aux changements climatiques utilisent des ensembles à modèle multiples qui montrent une augmentation des moyennes mondiales de la vapeur d'eau, de l'évaporation et des précipitations. Pour ce qui est du Canada, les modèles laissent supposer que les précipitations seront plus importantes dans les zones de latitude élevée, avec des augmentations dans les précipitations annuelles dépassant 20 %. Dans la majeure partie de l'Est du Canada et du Sud de l'Ontario, les prévisions montrent que, comparativement aux moyennes entre 1980 et 1999, les précipitations moyennes pour 2080 à 2099 en hiver (décembre à février) augmenteront (+0,2 ~ +0,4 mm/j), alors que les précipitations moyennes en été (juin à août) diminueront à 0,1 mm/j, tel qu'indiqué dans les changements moyens prévus dans les précipitations qui sont présentées dans la Figure 3.4.

Figure 3.4 : Moyenne des précipitations pour l'hiver et l'été – 2080 à 2099 (IPCC, 2007)



De façon générale, les précipitations peuvent augmenter d'environ 4 % et l'humidité absolue devrait diminuer légèrement. De même, la teneur en humidité du sol dans le Sud et l'Est de l'Ontario pourrait augmenter de près de 5 %. En supposant que ces prévisions soient vraies et que les taux de précipitation annuels moyens, l'humidité et l'humidité du sol augmentent, on s'attend à ce que ces changements aient une incidence sur les retombées de tritium. Ainsi, il pourrait y avoir une augmentation du dépôt de HTO sur le sol et dans les eaux souterraines. Cela pourrait entraîner une augmentation dans le captage associé à ces voies. En même temps, des dépôts plus importants pourraient diminuer quelque peu les concentrations atmosphériques annuelles moyennes, ce qui pourrait entraîner une diminution de l'exposition par inhalation.

La fréquence accrue des événements météorologiques extrêmes au cours des dernières décennies a été remarquée (Environnement Canada, 1998). Ceux-ci comprennent les tempêtes tropicales et les ouragans aux latitudes tropicales et subtropicales, et les tempêtes d'hiver aux latitudes tempérées. Bien que ces événements soient associés au forçage climatique causé par les GES, ces extrêmes peuvent également dénoter des cycles climatiques naturels. Plusieurs études se sont penchées sur la fréquence et la gravité des événements météorologiques au Canada et aux États-Unis. La Climatic Loads Task Force (Auld *et coll.*, non daté) indique que les précipitations annuelles moyennes ont augmenté d'environ 12 % entre 1900 et 1998 dans le Sud du Canada. On mentionne également un certain nombre d'études américaines qui indiquent une tendance à la hausse dans la fréquence des précipitations abondantes et extrêmes dans de nombreuses régions du Sud au Canada, y compris dans le bassin des Grands Lacs. Les résultats des modèles de changements climatiques laissent supposer que d'autres augmentations dans les précipitations extrêmes dans le Sud du Canada se produiront au cours des prochaines décennies. À de nombreux endroits, ce que l'on estimait être une tempête survenant tous les 50 ans revient aujourd'hui plus souvent.

Il semble y avoir un certain degré d'incertitude concernant l'incidence des changements climatiques sur la dispersion et le comportement du tritium dans l'atmosphère. L'une des raisons qui explique cet état de choses est que la modélisation des changements climatiques ne permet pas actuellement de prévoir de manière fiable les effets à court terme (quotidiens) de la variation du climat, qui joue un rôle important dans la dispersion du tritium. De plus, la résolution des modèles de changements climatiques actuels est régionale, et ne tient pas compte des caractéristiques sous régionales (littoraux, topographiques, etc.) propres à chaque installation. Ainsi, des travaux plus détaillés sur la réduction d'échelle des changements climatiques sont requis pour mieux comprendre leur influence sur la dispersion atmosphérique du tritium émis par les installations nucléaires.

4.0 COMPORTEMENT DYNAMIQUE DU TRITIUM DANS LE CYCLE DE L'EAU

La présente section donne un aperçu de la répartition du tritium de l'air dans l'eau du sol et dans l'eau de surface, de la migration du tritium de l'eau du sol vers les eaux souterraines et du comportement du tritium dans les panaches de lacs et de rivières. Les transferts entre l'air, l'eau du sol, l'eau de surface et les eaux souterraines sont indiqués à la Figure 4.1. Cette figure illustre également l'ensemble des transferts entre les différents milieux environnementaux pertinents pour l'exposition humaine et l'évaluation de la dose.

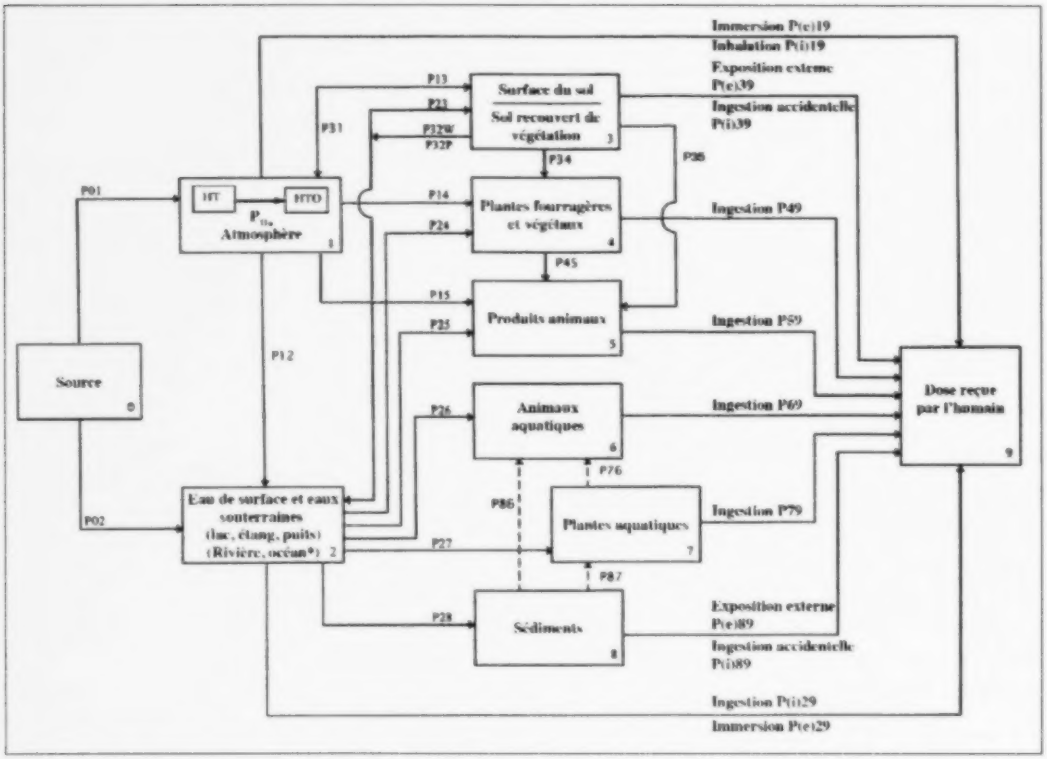
4.1 Répartition du tritium de l'air dans le sol et l'eau de surface

Tel qu'indiqué à la Section 3.1.3, le tritium peut être transféré par échange de vapeur et par précipitation entre l'air et la surface de la terre, c'est-à-dire dans l'eau interstitielle du sol et dans les plans d'eau en surface. L'échange de vapeur est continu et constitue le principal processus de formation des panaches près du sol (Bunnenberg *et coll.*, 1986). Cet échange est augmenté par le transfert du tritium dans les précipitations durant les chutes de pluie et de neige. Dans le cas des chutes de neige, le transfert se termine lorsque la neige fond (Davis, 1997). Les pluies de faible intensité sont plus efficaces que les pluies fortes pour récupérer le tritium dans un panache atmosphérique local (Bolin, 1961; Sejkora, 2006).

Il est difficile, et généralement non nécessaire de distinguer le transfert du tritium se produisant par précipitation de celui qui se fait par échange direct de vapeur d'eau. Les concentrations de tritium dans un plan d'eau ou dans l'eau interstitielle dans le sol sont représentatives de l'histoire récente des entrées de tritium et reflètent un équilibre dynamique entre l'air et l'eau. La période historique pertinente dépend du temps de séjour de l'eau dans le plan d'eau ou dans le sol en surface. Le temps de séjour de l'eau dans le sol de surface est de l'ordre de quelques mois. Celui de l'eau contenue plus en profondeur dans le sol est de quelques années à quelques milliers d'années. Le temps de séjour dans les étangs et les lacs va de quelques semaines à des centaines d'années, selon le volume et le taux de rejet.

Les transferts entre l'air et l'eau du sol, ou les plans d'eau de surface de petite taille, comme les étangs, sont bien représentés par des modèles d'activité spécifique. Ces modèles s'appliquent lorsqu'il y a un échange d'isotope rapide entre les milieux environnementaux, alors si un milieu est contaminé initialement, les autres milieux auront tendance à avoir le même rapport du tritium à l'hydrogène (T/H), sauf dans le cas où il y a des effets de dilution. Le rapport T/H porte le nom d'activité spécifique du tritium.

Figure 4.1 : Modèle de transfert environnemental



- **Dans le cas des eaux océaniques, les voies P_{23}, P_{24}, P_{25} et $P(i)_{29}$ ne sont pas utilisées.**

Les sections suivantes examinent le transfert du tritium de l'air vers l'eau du sol en surface, et de l'air vers l'eau de surface, séparément, étant donné qu'il existe des différences importantes entre ces deux milieux environnementaux.

4.1.1 Répartition du tritium de l'air vers l'eau du sol

Le transfert du tritium présent sous forme de HTO dans la vapeur d'eau (ou la pluie) vers le HTO dans l'eau du sol est bien représenté par un modèle d'activité spécifique. Ce modèle suppose que l'eau du sol aura la même activité spécifique que l'humidité de l'air, sauf dans les cas de dilution causée par des précipitations non contaminées. Le modèle peut être formulé comme suit (Hart, 2008) :

$$P_{13eis_HTO} = RF_{es} / H_a \quad (m^3\ L^{-1}) \qquad \text{Équation 4.1}$$

où : RF_{es} = le rapport de la concentration de HTO dans l'eau du sol à celui de l'humidité de l'air (Bq • L^{-1} eau du sol par Bq • L^{-1} humidité de l'air)

H_a = humidité atmosphérique absolue (L • m^{-3})

Des données empiriques pour RF_{es} sont disponibles pour un certain nombre de sites de réacteurs, y compris la centrale nucléaire de Pickering (Spencer et Vereecken-Sheehan, 1994) et les Laboratoires de Chalk River (LCR). Les données relatives aux LCR (Davis *et coll.*, 2002) sont prises en compte dans le programme BIOMASS, et figurent à l'annexe B du rapport BIOMASS final (AIEA, 2003), ainsi que les ensembles de données russes et françaises contenues dans les annexes C et D. Les différents ensembles de données (tableaux 4.1 et 4.2) comportent une valeur par défaut de 0,3 pour RF_{es}, ce qui représente une dilution de l'eau du sol par précipitation non contaminée, qui diminue lorsque le panache atmosphérique n'est pas au-dessus du sol.

Tableau 4.1 : Valeur du RF_{es} mesurée à la centrale de Pickering (Spencer et Vereecken, 1994)

Date	Eau du sol[1] (Bq/mL)	Humidité de l'air[2] (Bq/mL)	Rapport (RF_{es})
21 juillet	0,84	3,37	0,25
6 août	1,29	1,74	0,74*
10 septembre	2,42	7,51	0,32
24 septembre	1,82	7,93	0,23
7 octobre	2,2	9,51	0,23
22 octobre	1,33	4,8	0,28
6 novembre	1,66	5,16	0,32
Moyenne			**0,34**
Écart-type			**0,18**

[1] *À une profondeur de 0 à 7 cm dans le sol*

[2] *Recueillie par un échantillonneur passif*

* *Les valeurs aberrantes sont incluses.*

Tableau 4.2 : Valeur du RF_{es} mesurée dans trois sites de réacteur (AIEA, 2003)

Emplacement sur le site	Canada (LCR)[1]	Russie (RFNC)	France (CEA)
1	0,31	0,261	0,27
2	0,26	0,131	0,44
3	0,22	0,344	0,24
4	-	-	0,17
Moyenne	**0,26**	**0,25**	**0,28**
Écart-type	**0,045**	**0,11**	**0,11**

Remarque :

Les trois sites ne sont pas très différents (ANOVA, $p = 0,898$). Dans le cas des données regroupées, $M = 0,265$, $ET = 0,087$.

[1] *Pour une profondeur de sol de 0,10 cm, il s'agit des valeurs moyennes et des données atmosphériques recueillies par échantillonneur passif (Davis et coll., 2002).*

Tableau 4.3 : Humidité absolue régionale et transfert du tritium de l'air vers l'eau interstitielle du sol

Paramètre	Darlington	Pickering	Bruce	LCR	G-2	Point Lepreau
Ha ($L \cdot m^{-3}$) pour le transfert vers l'eau interstitielle du sol	0,0069	0,0069	0,0066	0,005	0,0047	0,0054
RF_{es} (sans unité)	0,3	0,3	0,3	0,3	0,3	0,3
P_{13es} ($m^3 \cdot L^{-1}$)	43,5	43,5	45,5	60,0	63,8	55,6

Les valeurs de l'humidité absolue sont obtenues auprès du Service de l'environnement atmosphérique, 1971 2000; la RF_{es} est basée sur les données des Tableaux 4.1 et 4.2.

L'humidité absolue, Ha, devrait être une valeur annuelle moyenne pour représenter l'eau du sol annuelle moyenne à utiliser dans les calculs de la dose annuelle. Des données propres au site doivent être utilisées s'il en existe, ou encore des valeurs régionales par défaut (Tableau 4.3). Selon les données canadiennes régionales, les valeurs par défaut de P_{13es} pour le tritium sont illustrées au Tableau 4.3.

En l'absence de source ponctuelle, on peut s'attendre à ce que la concentration de tritium dans l'eau du sol soit égale à celle de l'humidité de l'air, selon la prémisse sous-jacente du modèle. Des données de base opérationnelles pour le site Cernavoda en Roumanie (Paunescu *et coll.*, 1999) indiquent que le tritium dans l'eau du sol est semblable à celui de l'eau de pluie (environ 4 Bq/L). Les données de base pour un site se trouvant sur le mont Hakkoda au Japon (Sasaki *et coll.*, 2000) indiquent que la concentration de tritium dans la vapeur d'eau est légèrement supérieure à celle du tritium dans les précipitations (1,1 contre 1,0 Bq/L). Ainsi, la prémisse du modèle peut être légèrement prudente.

Davis *et coll.* (1995) et Noguchi *et coll.* (2001) indiquent des variations à court terme dans l'eau du sol suite au transfert de HTO et dans les échantillonneurs contenant de l'eau suite à une expérience de rejet chronique de HT. Une certaine partie du HT rejeté a été convertie en HTO, tel qu'indiqué à la Section 3.2.1. Le HTO contenu dans l'humidité de l'air et dans le sol ou dans l'eau échantillonnée a été mesuré pendant une période de 12 jours suite à un rejet de HT. On a découvert que le HTO dans l'eau du sol était généralement légèrement plus élevé que dans l'humidité de l'air, ce qui reflète l'origine du HTO par conversion du HT, et indique que les pluies ont permis de diluer l'eau du sol d'un facteur de deux ou plus, comparativement aux périodes sans pluie. Les échantillonneurs ont indiqué qu'il y avait un cycle diurne naturel dans le taux de transfert du HTO vers l'eau. Les vitesses d'échange vont de 10^{-8} m/s la nuit à un maximum de 10^{-7} m/s le jour. Des corrélations entre les vitesses d'échange et les conditions météorologiques ont montré une forte corrélation avec la vitesse des vents et des corrélations plus faibles avec le rayonnement solaire et la température de l'air.

Dans des conditions de rejet de HTO, des vitesses plus élevées de transfert du HTO vers l'eau du sol sont indiquées. Davis *et coll.* (1997) mentionne une vitesse de dépôt sec de $1{,}6 \times 10^{-3}$ m/s sur la couverture de neige pendant une période de 18 jours accompagnée de rejet de HTO en hiver, alors que Barry (1964) a indiqué une valeur de $3{,}0 \times 10^{-3}$ m/s dans des conditions semblables (ces retombées ont une incidence sur l'eau du sol au printemps). Pendant l'été, des vitesses de dépôt sec de $4{,}0 \times 10^{-3}$ m/s (Gulden *et coll.*, 1990) et de 20×10^{-3} (Bunnenberg *et coll.*, 1992) ont été signalées.

Les variations diurnes ou saisonnières dans les vitesses d'échange ou de dépôt n'ont pas d'incidence sur l'activité spécifique de l'humidité de l'air et de l'eau du sol. Cependant, ces vitesses ont une incidence sur le temps requis pour que l'humidité de l'air et l'eau du sol atteignent l'équilibre prévu, après un changement dans le système, comme un changement de direction du panache atmosphérique vers un nouveau secteur levé à la boussole. Dans le cas des sources ponctuelles, le tritium dans l'eau du sol suivra constamment les changements de l'humidité de l'air, avec un certain délai, et sera rarement exactement à l'équilibre.

Pour déterminer l'exposition et la dose moyennes annuelles, il n'est pas nécessaire que les modèles de répartition du tritium suivent les cycles diurnes, ou une autre variation légère de la répartition. L'important est que les estimations de la répartition soient justes sur une base annuelle moyenne.

Le temps de séjour de l'eau ou du HTO dans le sol peu profond peut être déterminé approximativement en divisant la profondeur du sol par le taux d'infiltration d'eau dans les zones de sol peu profond. Dans les sols cultivés, la couche de 20 à 30 cm du dessus se mélange au moins une fois par année, alors que dans les autres types de sol, les mélanges naturels se produisent sur environ 20 cm. Avec des taux d'infiltration de l'ordre de 0,2 à 0,4 m/a (Baron, *et coll.*, 1997; Lin et Wei, 2005; Hart, 2008) le temps de séjour dans le sol peut se situer entre 0,5 et 1,5 an. Les périodes hydrologiques correspondantes sont de 0,35 à 1,05 an. Selon ces périodes, une fois que l'entrée du tritium dans le sol s'arrête, la concentration de tritium dans l'eau du sol peu profond peut diminuer à moins de 10 % de la concentration lorsque l'entrée a cessé, en deux à quatre ans, ou à 5 % en deux à cinq ans.

4.1.2 Répartition du tritium de l'air dans l'eau de surface

Le transfert du tritium sous forme de HTO dans la vapeur d'eau (ou la pluie) en HTO dans un étang est représenté comme étant un transfert par précipitation, à titre d'hypothèse prudente, étant donné que l'hydrologie des étangs a tendance à être propre au site et que l'on ne dispose pas de beaucoup de données sur les étangs. Toute infiltration d'eau en surface ou d'eau souterraine peu profonde éloignée de la source ponctuelle atmosphérique devrait causer moins de contamination par le tritium que les précipitations, et assurera une dilution. Cependant, il est prudent de supposer qu'il n'y a aucune dilution.

En théorie, l'Équation 4.1 pourrait être utilisée pour estimer le transfert du tritium de l'air vers un étang, avec un facteur de réduction (FR) permettant de tenir compte de la dilution par des précipitations non contaminées qui tombent lorsque le panache local ne se trouve pas au-dessus de l'étang ou du bassin hydrologique. Cependant, comme les étangs ont une taille et un bassin hydrologique variables, il serait difficile d'élaborer un facteur de réduction générique, même si des mesures pour certains étangs étaient disponibles.

À la lumière de l'hypothèse prudente voulant que l'eau des étangs est semblable aux précipitations, de nombreuses installations de réacteur surveillent le tritium de manière courante (sous forme de HTO) dans l'air et dans les précipitations aux frontières de leur site, et utilisent ces données pour élaborer un facteur de transfert de l'air vers les étangs qui est prudent mais générique (P_{12p}). LaMarre (2000) propose que $P_{12p} = 100$ m^3/L, d'après les données pour la centrale de Pickering et cette valeur a été mentionnée par Hart (2008) dans son élaboration des calculs des LRD aux installations nucléaires. Les données pertinentes pour trois installations sont présentées au Tableau 4.4, y compris des données plus récentes pour Ontario Power Generation (Borromeo, 2007) et Bruce Power (McDougall, 2007).

Les données de Pickering figurant au Tableau 4.4 montrent une valeur de P_{12p} moyenne mise à jour pour le site qui serait plus près de 80 m^3/L. Les valeurs moyennes pour les sites de Darlington et de Bruce seraient de 75 et 71 m^3/L, respectivement. Cependant, on peut raisonnablement retenir la valeur de 100 m^3/L comme facteur de transfert générique prudent pour les étangs.

Les lacs de grande taille, les mouvements d'eau dus au courant et la profondeur de l'eau dans la zone extraterritoriale limitent l'influence du tritium atmosphérique sur la colonne d'eau se trouvant sous un panache atmosphérique. Hart (2008) présente des calculs limitatifs qui montrent que la dose par rejet unitaire dans l'air augmente de moins de 1 % lorsque le transfert de l'air vers l'eau du lac est considéré comme une voie dans l'estimation de la dose. Ainsi, le transfert de l'air vers les grands lacs n'est habituellement pas étudié.

Le comportement du tritium dans les panaches aquatiques à la suite d'un rejet direct dans un grand lac ou une rivière est la variable la plus importante à comprendre dans le contexte de la dose par rejet unitaire dans l'eau. Cet aspect du comportement du tritium est examiné en détail à la Section 4.3.

Tableau 4.4: Données sur les précipitations et la surveillance de l'air pertinentes pour le facteur de transfert de l'air vers les étangs

Année	Darlington Précipitations Bq/L	Air Bq/m³	P_{12p} m³/L	Pickering Précipitations Bq/L	Air Bq/m³	P_{12p} m³/L	Bruce Précipitations Bq/L	Air Bq/m³	P_{12p} m³/L
1988	31	0,7	44,29	2 900	27	107,41	440	6,6	66,67
1989	140	1,5	93,33	2 100	22	95,45	484	7,8	62,05
1990	50	0,9	55,56	1 300	17	76,47	295	4,9	60,20
1991	140	1,2	116,67	1 350	14	96,43	235	4	58,75
1992	39	0,7	55,71	1 150	12	95,83	279	3,9	71,54
1993	40	0,7	57,14	650	8	81,25	354	5,1	69,41
1994	62	0,9	68,89	700	6	116,67	221	3,48	63,51
1995	70	0,9	77,78	750	7	107,14	184	2,81	65,48
1996	48	0,6	80,00	450	5	90,00	184	2,85	64,56
1997	68	0,6	113,33	700	6	116,67	140	2,3	60,87
1998	62	0,65	95,38	600	6	100,00	170	1,6	106,25
1999	80	0,65	123,08	550	5	110,00	149,6	2,20	68,01
2000	76	0,6	126,67	450	4	112,50	108	1,37	78,83
2001	76	1,2	63,33	300	9	33,33	106	1,6	66,25
2002	60	0,8	75,00	300	8	37,50	111	2,2	50,45
2003	28	0,6	46,67	250	6	41,67	112	1,67	67,07
2004	40	0.8	50,00	300	7	42,86	110,2	1,74	63,33
2005	26	0,7	37,14	250	8	31,25	225,6	1,9	118,74
2006	28	0,7	40,00	250	7	35,71	190	2,18	87,16
	Moyenne		74,74			80,43			71,01
	ET		29,10			32,12			16,62
	79e centile		99,33	67e centile		100,43	93e centile		101,29

La valeur de LaMarre (2000) de P_{12p} == 100 m³/L est basée sur les données de Pickering de 1988 à 2000. Les données du tableau sont tirées de Borromeo (2007) et McDougall (2007).

4.2 Transport du tritium de l'eau du sol vers les eaux souterraines

Le transfert du tritium sous forme de HTO dans l'eau du sol vers les eaux souterraines à n'importe quelle profondeur est essentiellement un processus d'infiltration vers le bas à la verticale. Il s'agit d'une simplification du processus, parce qu'il y a également un écoulement horizontal dans l'aquifère, en présence d'un gradient, ainsi qu'un écoulement vers le haut lorsque l'aquifère rencontre un cours d'eau en surface, c'est-à-dire une zone de décharge (Figure 4.2). Une dispersion longitudinale et latérale se produit le long du trajet d'écoulement horizontal, alors le panache provenant de la zone de la source devient plus large, mais les concentrations dans l'axe central sont réduites le long du trajet. Les concentrations de tritium sont également réduites par désintégration le long du trajet d'écoulement.

L'écoulement horizontal est plus important pour un milieu (p. ex. puits) de l'amont vers l'aval en provenance d'une source atmosphérique, parce que l'écoulement horizontal en provenance de l'amont peut contenir des concentrations de tritium plus élevées que celui qui provient directement de l'air au-dessus du récepteur. Dans d'autres cas, le transfert de l'eau du sol vers les eaux souterraines peut être représenté de manière prudente comme une infiltration vers le bas à la verticale.

Hart (2008) suppose un transport vers le bas simple et vertical dans sa définition de P_{3eis2e}, et un transfert de radionucléides de l'eau du sol vers les eaux souterraines, comme suit :

$$P_{3eis2e} = \exp(-\lambda_r \bullet T_r)$$
$$= \exp[-\lambda_r \bullet Z_{TOS} (n+K_d \bullet \rho_b) / q_{gw\ infil}] \ (L \bullet L^{-1}) \qquad \text{Équation 4.2}$$

où :

T_r = temps de trajet du sol de surface vers le filtre pour puits (s)
Z_{TOS} = profondeur du sol par rapport au-dessus du filtre pour puits (m)
n = débit spécifique (sans unité)
K_d = constante de distribution du radionucléide dans le sol ($m^3 \bullet kg^{-1}$)
ρ_b = densité apparente du sol ($kg \bullet m^{-3}$)
$q_{gw\ infil}$ = taux d'infiltration (m/s)
λr = taux de désintégration radioactive (s^{-1})

Dans le cas du tritium, la valeur de K_d est nulle, étant donné que l'eau n'est pas absorbée dans le sol et que l'expression $K_d \bullet \rho_b$ est éliminée de l'équation.

Figure 4.2 : Schéma d'un circuit d'écoulement des eaux souterraines

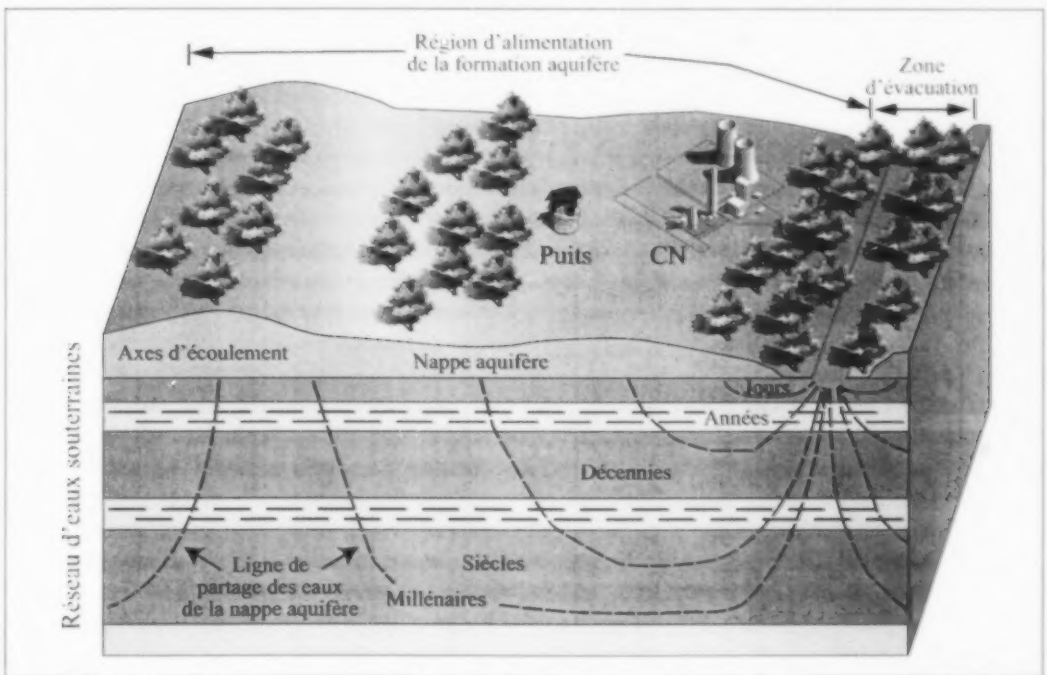


Tableau 4.4: Données sur les précipitations et la surveillance de l'air pertinentes pour le facteur de transfert de l'air vers les étangs

Année	Darlington Précipitations Bq/L	Air Bq/m³	P_{12p} m³/L	Pickering Précipitations Bq/L	Air Bq/m³	P_{12p} m³/L	Bruce Précipitations Bq/L	Air Bq/m³	P_{12p} m³/L
1988	31	0,7	44,29	2 900	27	107,41	440	6,6	66,67
1989	140	1,5	93,33	2 100	22	95,45	484	7,8	62,05
1990	50	0,9	55,56	1 300	17	76,47	295	4,9	60,20
1991	140	1,2	116,67	1 350	14	96,43	235	4	58,75
1992	39	0,7	55,71	1 150	12	95,83	279	3,9	71,54
1993	40	0,7	57,14	650	8	81,25	354	5,1	69,41
1994	62	0,9	68,89	700	6	116,67	221	3,48	63,51
1995	70	0,9	77,78	750	7	107,14	184	2,81	65,48
1996	48	0,6	80,00	450	5	90,00	184	2,85	64,56
1997	68	0,6	113,33	700	6	116,67	140	2,3	60,87
1998	62	0,65	95,38	600	6	100,00	170	1,6	106,25
1999	80	0,65	123,08	550	5	110,00	149,6	2,20	68,01
2000	76	0,6	126,67	450	4	112,50	108	1,37	78,83
2001	76	1,2	63,33	300	9	33,33	106	1,6	66,25
2002	60	0,8	75,00	300	8	37,50	111	2,2	50,45
2003	28	0,6	46,67	250	6	41,67	112	1,67	67,07
2004	40	0,8	50,00	300	7	42,86	110,2	1,74	63,33
2005	26	0,7	37,14	250	8	31,25	225,6	1,9	118,74
2006	28	0,7	40,00	250	7	35,71	190	2,18	87,16
	Moyenne		74,74			80,43			71,01
	ET		29,10			32,12			16,62
	79e centile		99,33	67e centile		100,43	93e centile		101,29

La valeur de LaMarre (2000) de P_{12p} = 100 m³/L est basée sur les données de Pickering de 1988 à 2000. Les données du tableau sont tirées de Borromeo (2007) et McDougall (2007).

4.2 Transport du tritium de l'eau du sol vers les eaux souterraines

Le transfert du tritium sous forme de HTO dans l'eau du sol vers les eaux souterraines à n'importe quelle profondeur est essentiellement un processus d'infiltration vers le bas à la verticale. Il s'agit d'une simplification du processus, parce qu'il y a également un écoulement horizontal dans l'aquifère, en présence d'un gradient, ainsi qu'un écoulement vers le haut lorsque l'aquifère rencontre un cours d'eau en surface, c'est-à-dire une zone de décharge (Figure 4.2). Une dispersion longitudinale et latérale se produit le long du trajet d'écoulement horizontal, alors le panache provenant de la zone de la source devient plus large, mais les concentrations dans l'axe central sont réduites le long du trajet. Les concentrations de tritium sont également réduites par désintégration le long du trajet d'écoulement.

L'écoulement horizontal est plus important pour un milieu (p. ex. puits) de l'amont vers l'aval en provenance d'une source atmosphérique, parce que l'écoulement horizontal en provenance de l'amont peut contenir des concentrations de tritium plus élevées que celui qui provient directement de l'air au-dessus du récepteur. Dans d'autres cas, le transfert de l'eau du sol vers les eaux souterraines peut être représenté de manière prudente comme une infiltration vers le bas à la verticale.

Hart (2008) suppose un transport vers le bas simple et vertical dans sa définition de P_{Sol2Gw} et un transfert de radionucléides de l'eau du sol vers les eaux souterraines, comme suit :

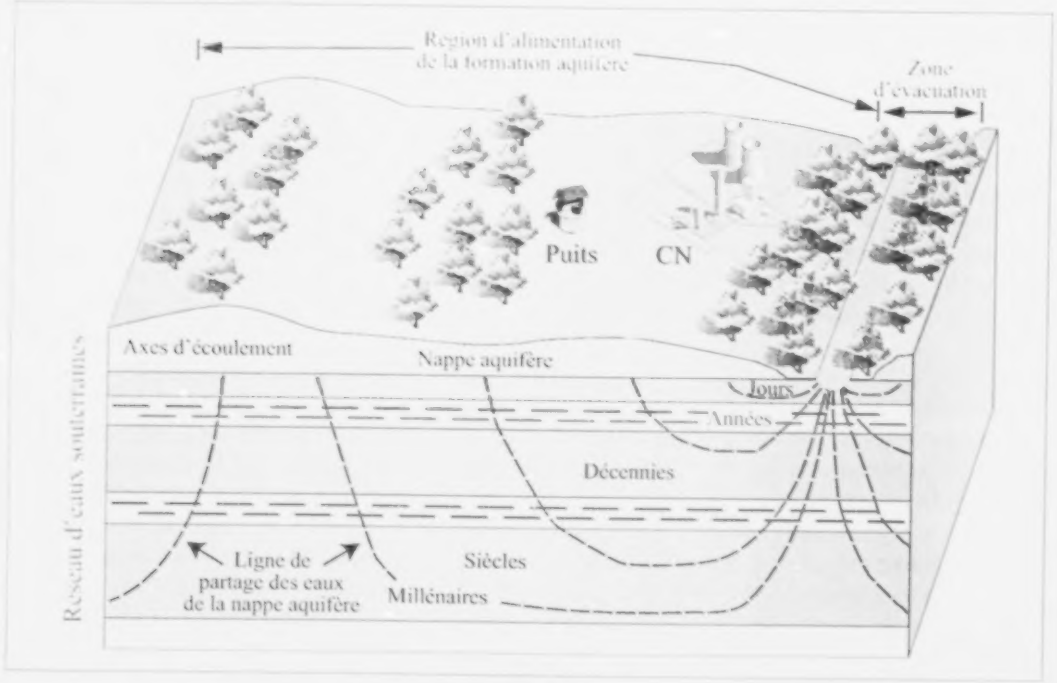
$$P_{Sol2Gw} = \exp(-\lambda_r \bullet T_f)$$
$$= \exp[-\lambda_r \bullet Z_{TOS} (n + K_d \bullet \rho_b) / q_{gw\ infil}] \quad (L \bullet L^{-1}) \qquad \text{Équation 4.2}$$

où :

T_f = temps de trajet du sol de surface vers le filtre pour puits (s)
Z_{TOS} = profondeur du sol par rapport au-dessus du filtre pour puits (m)
n = débit spécifique (sans unité)
K_d = constante de distribution du radionucléide dans le sol ($m^3 \bullet kg^{-1}$)
ρ_b = densité apparente du sol ($kg \bullet m^{-3}$)
$q_{gw\ infil}$ = taux d'infiltration (m/s)
λr = taux de désintégration radioactive (s^{-1})

Dans le cas du tritium, la valeur de K_d est nulle, étant donné que l'eau n'est pas absorbée dans le sol et que l'expression $K_d \bullet \rho_b$ est éliminée de l'équation.

Figure 4.2 : Schéma d'un circuit d'écoulement des eaux souterraines



L'utilisation de valeurs paramétriques spécifiques au site est recommandée, mais cela n'est pas toujours possible. Par conséquent, des valeurs par défaut ont été définies. Pour $q_{gw\ infil}$, une valeur par défaut de $4{,}75 \times 10^{-9}$ m • s^{-1} (0,15 m • a^{-1}) peut être utilisée, d'après les données de Jensen *et coll.* (1995) pour le site de Bruce Power. Dans le cas des puits profonds, le taux d'infiltration peut être inférieur à l'infiltration vers un sol peu profond, parce qu'il y a une certaine infiltration qui est perdue par écoulement horizontal peu profond et/ou par évapotranspiration.

Le débit spécifique (n) est une moyenne pour la voie en entier entre la surface du sol et la zone de prise d'eau du puits. La teneur en humidité du sol peut être considérée comme un débit spécifique dans les zones non saturées au-dessus de la nappe aquifère; ainsi, une valeur de 0,2 serait appropriée. La porosité des milieux poreux meubles sous la nappe aquifère est de l'ordre de 0,3 à 0,5. La porosité de la roche fissurée est plus faible, à environ 0,2 pour la roche sédimentaire et à 0,1 pour la roche ignée. De façon générale, un débit spécifique de 0,2 peut être utilisé s'il n'y a pas de données propres au site.

Bien que la profondeur totale d'un puits soit généralement connue, la profondeur à laquelle se trouve le filtre pour puits n'est pas toujours disponible. Pour cette raison, on suppose que la zone de prise d'eau représente le 20 % inférieur de la profondeur totale du puits. Cette hypothèse est raisonnable, parce que le filtre pour puits est habituellement situé dans la zone la plus perméable, et cela est souhaitable pour réduire au minimum la longueur du filtre pour puits à des fins économiques. Les puits sont généralement munis d'une enceinte qui va du dessus du filtre pour puits jusqu'à la surface, et cette zone ne devrait pas être perméable et ne devrait pas laisser entrer l'eau dans le puits.

Si la profondeur du dessus du filtre est connue, elle peut être utilisée comme profondeur efficace. Cependant, on peut utiliser la valeur par défaut dans la zone de prise d'eau qui correspond à 80 % de la profondeur totale du puits, ou $Z_{TOS} = 0{,}8 \bullet Z_{puits}$. Cette hypothèse suppose que seul le dessus de la zone de prise d'eau du puits fournit de l'eau au puits. En réalité, l'eau dans le puits provient de la zone complète de prise d'eau du puits, l'eau plus récente se trouvant au-dessus et l'eau plus ancienne au fond. Si les rejets atmosphériques sont continus, l'eau plus ancienne sera moins contaminée en raison d'une période plus longue pour la désintégration des radionucléides. L'hypothèse voulant que l'eau est seulement au dessus de la zone de prise d'eau, c'est-à-dire l'eau la plus récente possible, fournit un niveau additionnel de prudence dans le modèle de puits.

Le modèle ne tient pas compte des fuites d'eau de sol tritiée dans le tubage de puits. S'il y a de telles fuites, l'eau au filtre pour puits sera plus récente que celle représentée par le modèle et, par conséquent, elle sera plus contaminée que prévu parce qu'il y aura eu moins de temps pour la désintégration que ce que l'on avait prévu.

D'autres sources potentielles d'erreur dans la modélisation des concentrations du tritium dans les puits comprennent les hypothèses relatives au taux d'infiltration, au filtre pour puits et au débit spécifique du sol de subsurface. Le temps de trajet des eaux souterraines est inversement proportionnel à la conductivité hydraulique, qui est proportionnelle au carré de la classe granulométrique (Freeze et Cherry, 1979). Par conséquent, l'erreur liée au substrat

dans le modèle des eaux souterraines suivra probablement la distribution logarithmique normale. Une granulométrie de deux est suffisante pour tenir compte de la granulométrie du sable, et une distribution semblable des erreurs dans les prévisions des eaux souterraines est prévue.

Selon la profondeur, les concentrations de fond de tritium (sous forme de HTO) dans les eaux souterraines peuvent être importantes, parce que les entrées de tritium provenant des retombées atmosphériques ont été plus élevées dans le passé. Les concentrations de tritium dans l'air et les précipitations ont commencé à augmenter autour des années 1950 par suite des essais d'armes nucléaires, et ont atteint un maximum en 1963 avec le traité interdisant les essais nucléaires entre les États-Unis et l'Union soviétique. Elles ont diminué considérablement depuis. Les concentrations de tritium à Ottawa par les précipitations ont atteint un maximum d'environ 600 Bq/L en 1963 (Mutch et Mahony, 2008).

Les profils de la concentration de tritium en fonction de la profondeur dans les eaux souterraines montrent habituellement un pic à la profondeur correspondant à 1963. Des études rétrospectives (Miyamoto *et coll.*, 1995) montrent un pic de tritium dans les précipitations à environ 100 Bq/L en 1963, et un pic correspondant dans les eaux souterraines peu profondes (au-dessus de la zone saturée) à environ 60 Bq/L en 1964. La concentration réduite dans les eaux souterraines de cette zone a été attribuée principalement à la dilution par la décharge des eaux souterraines non contaminées plus profondes dans la couche supérieure de l'aquifère. Le temps de séjour dans la couche supérieure a été estimé à trois ans, ce qui est insuffisant pour favoriser une désintégration appréciable du tritium.

Une étude sur les eaux souterraines en Chine (Lin et Wei, 2005) montre une concentration maximale de tritium en 1988 à 66 Bq/L à une profondeur de 6 à 7 m, qui représente les retombées, et au même endroit, un pic à 27 Bq/L à une profondeur de 10 m en 1997. La différence dans les concentrations est partiellement attribuable à la désintégration et en partie à la dispersion longitudinale durant la migration verticale (Figure 2.3). La vitesse de migration verticale a été estimée entre 0,25 et 0,30 m/a. Une étude semblable réalisée en France (Baran *et coll.*, 1997) montre des concentrations de tritium dans trois profils prélevés en 2002 qui ont une concentration maximale à une profondeur de 9 à 10 m, ce qui correspond aux retombées. Le taux d'infiltration moyen pendant la période de 1963 à 2002 a été estimé entre 0,20 et 0,21 m/a d'après un pic de centre de masse.

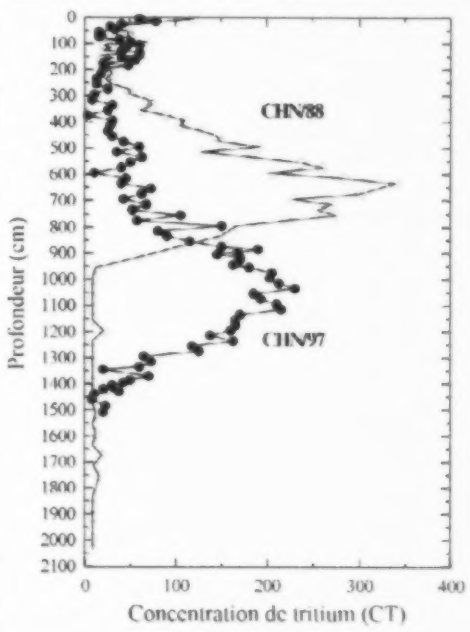


Figure 4.3 : Changements en fonction du temps dans le profil de la concentration de tritium dans les eaux souterraines (tiré de Lin et Wei, 2006). (Remarque : 100 CT = 12 Bq/L; les résultats de 1988 sont ajustés pour tenir compte de la désintégration aux valeurs de 1997)

4.3 Comportement du tritium dans les panaches lacustres et fluviaux

Le tritium sous forme de HTO est rejeté par les installations nucléaires canadiennes dans l'eau de refroidissement vers de grands lacs ou de grandes rivières. L'installation de Point Lepreau au Nouveau-Brunswick rejette du tritium dans la baie de Fundy, qui peut être modélisée comme étant un grand lac, avec un ajustement approprié des paramètres. Les modèles de type gaussien pour les radionucléides rejetés dans les grands lacs et les grandes rivières sont fournis par le NCRP (1996) et ont été largement utilisés pour estimer les concentrations annuelles moyennes de tritium dans les panaches aquatiques rejetés par les installations nucléaires.

Le modèle de grand lac représente les processus d'advection et de dispersion causés par les courants du long du littoral, ainsi que les pertes en radionucléides causées par la désintégration radioactive et la sédimentation. Étant donné que les temps de trajet de l'eau vers les récepteurs, c'est-à-dire les prises d'eau potable, sont de l'ordre de quelques jours, les pertes par désintégration radioactive sont peu importantes. Les pertes de tritium associées à la sédimentation sont nulles. Un paramètre de dilution initial permet de tenir compte des effets de diffusion. Le modèle présenté par Hart (2008) comprend un facteur qui tient compte de la fréquence des directions de courant vers le récepteur, alors la concentration à cet endroit représente une valeur moyenne annuelle. D'autres facteurs ayant une incidence sur la concentration comprennent la profondeur de l'eau, la vitesse du courant et un paramètre de dispersion latérale.

D'après l'étalonnage du modèle pour tenir compte de la température et/ou des données sur le tritium, Hart (2008) fournit des valeurs de paramètre par défaut pour les installations canadiennes. À l'aide de ces valeurs paramétriques, la concentration de tritium prévue qui augmente à une usine d'alimentation en eau (UAE) à proximité de la centrale de Pickering est assez conforme aux valeurs mesurées et corrigées pour tenir compte du rayonnement de fond à l'UAE (Tableau 4.5). Il existe une meilleure concordance en champ lointain, où le panache est bien dispersé, plutôt qu'en champ proche. Comme le modèle prévoit une concentration dans l'axe du panache, les prises d'eau des puits de la ligne d'axe ont des concentrations inférieures aux valeurs prévues, particulièrement en champ proche.

La concentration naturelle de tritium dans les Grands Lacs comprend une composante associée aux retombées qui sont en diminution, et une composante associée à la concentration de fond. Les retombées ont été estimées par Klukas (1999) comme étant de 1,12 Bq/L dans le lac Ontario en 2006. La concentration naturelle a été estimée à 0,585 Bq/L. La concentration de fond combinée actuellement est d'environ 1,70 Bq/L, non associée aux centrales nucléaires.

Il y a une concentration de fond de HTO en circulation dans le lac Ontario en raison des émissions historiques de centrale, et certaines d'entre elles sont encore en circulation dans le lac. À Pickering, cette composante peut être estimée comme suit, en supposant des rejets historiques semblables aux rejets actuels :

$$\frac{dC}{dt} = \frac{W_e}{V} - \frac{C \bullet Q_{ext.}}{V} - C \bullet \lambda_r \qquad \text{Équation 4.3}$$

où :
- C = concentration de HTO dans le lac entier (Bq/L)
- W_e = charge de HTO de l'effluent (Bq/s)
- V = volume du lac entier (m^3)
- $Q_{ext.}$ = débit de décharge volumétrique (m^3/s)
- λ_r = constante de désintégration radioactive (1/s)

L'intégration de cette équation en fonction du temps, la concentration (C) en régime permanent est :

$$C = W_e / (Q_{ext.} + V \lambda_r) \qquad \text{Équation 4.4}$$

D'après la charge de 2006 (W_e) qui est de $1{,}05 \times 10^7$ Bq/s (Borromeo, 2007), un débit sortant de 7,198 m^3/s (Environnement Canada, 1983) et un volume de $1{,}64 \times 10^{12}$ m^3 (ILEC, 1999), la concentration de fond en circulation attribuable à Pickering est estimée à 1,03 Bq/L. Un autre 0,6 Bq/L serait attribuable à la centrale de Darlington, d'après les rejets de 2006. Les concentrations mesurées dans six UAE en champ lointain sont en moyenne de 3,5 Bq/L, ce qui laisse supposer une concentration en circulation de 1,8 Bq/L pour les centrales, après correction afin de tenir compte du rayonnement de fond et des retombées. La différence entre 1,6 et 1,8 Bq/L peut refléter les entrées en amont.

Le modèle de rivière de NCRP (1996) représente les processus d'advection et de dispersion des courants, ainsi que les pertes de radionucléides causées par la désintégration radioactive et la sédimentation. Encore une fois, les pertes sont négligeables pour ce qui est des temps de trajet d'intérêt. Les valeurs des paramètres par défaut sont fournies par Hart (2008) pour deux réacteurs situés près de rivières. D'après ces paramètres pour le site des LCR, une augmentation du tritium prévue de 2,6 Bq/L à la prise d'eau de Pembroke, à 28 km en aval, peut être comparée à une augmentation mesurée de 3,8 Bq/L (De Waele, 2006). Une concentration de fonds de 3 Bq/L a été mesurée en amont.

De petits écarts existent dans les concentrations de fond de tritium dans les lacs et les rivières aujourd'hui, d'après des facteurs comme la latitude et la proximité par rapport à la mer. Radwan *et coll.* (2001) indiquent des concentrations de fond pour les rivières intérieures et les affluents en Pologne de 1,5 à 1,9 Bq/L pour la période de 1994 à 1999. La concentration dans les lacs va de 1,4 à 1,8 Bq/L, alors que dans les rivières près de la mer Baltique, elle va de 0,7 à 1,3 Bq/L. Les concentrations dans les eaux intérieures étaient semblables à celles dans les précipitations, qui vont de 1,3 à 2,0 Bq/L pour la même période. Miyamoto *et coll.* (1995) ont indiqué des concentrations dans les rivières japonaises de 2,0 Bq/L en 1985, qui sont semblables aux concentrations moyennes dans les précipitations.

Tableau 4.5 : Modèle simple de dilution aquatique en fonction de la distance (panache local) superposé à la concentration de fond en circulation dans le lac Ontario

Concentration de HTO (Bq/L)			Distance		Modèle local	Modèle total**	Dose reçue par un adulte suite à l'ingestion d'eau + µSv/a
Usine d'alimentation en eau potable	Moyenne mesurée	Moyenne moins la concentration de fond*	km	Direction	Augmentation du HTO Bq/L	Augmentation du HTO Bq/L	
Ajax	6,10	4,40	5	E	9,02	10,04	0,103
Whitby	6,37	4,67	12	E	3,99	5,02	0,051
Oshawa	7,14	5,45	19	E	2,48	3,51	0,036
Scarborough (Horgan)	5,11	3,42	11	O	3,75	4,78	0,049
Toronto (Harris)	5,15	3,45	22	O	1,82	2,84	0,029

* *Concentration de fond + retombées = 1,7 Bq/L en 2006 (rejet = 1,05 x 10^{7} Bq/s)*

** *Le modèle total comprend le panache local (axe central) plus la concentration de fond en circulation (1,03 Bq/L).*

\+ *Dose basée sur la consommation d'eau moyenne d'un adulte (511 L/a)*

5.0 COMPORTEMENT PRÉVU ET OBSERVÉ DU TRITIUM DANS L'ENVIRONNEMENT AUX SITES DE REJET

La présente section compare les concentrations de tritium prévues par les modèles et observées dans l'air, dans l'eau du sol, dans l'eau de surface et dans les eaux souterraines à proximité d'installations rejetant du tritium. Les installations examinées comprennent des installations de fabrication de sources autoluminescentes au tritium et des réacteurs nucléaires. Les données environnementales qui sont utilisées dans l'élaboration des modèles de prévision (comme indiqué à la Section 4.0) ne sont pas considérées ici, puisque les données servant à élaborer un modèle ne peuvent être utilisées pour vérifier son rendement.

5.1 Fabricants de sources autoluminescentes au tritium

Les fabricants de sources autoluminescentes au tritium comprennent SRB Technologies Ltd. à Pembroke (Ontario) et Shield Source Inc. (SSI) à Peterborough (Ontario). Les données directement disponibles et pertinentes pour la dispersion moyenne annuelle et la répartition environnementale du tritium pour ces installations sont examinées. Une période d'un an est appropriée pour déterminer les doses annuelles reçues par le public, en tenant compte du fait que le temps de séjour du tritium dans le sol est semblable et en tenant compte du temps de trajet vers les eaux souterraines qui sont beaucoup plus importants.

5.1.1 SRB Technologies Limited

Des travaux de modélisation et des études de surveillance du site de SRB Technologies ont été effectués récemment par EcoMetrix (2008). Ces études comprenaient la modélisation et la mesure des concentrations de tritium (HTO) dans l'air, dans l'eau du sol et dans les eaux souterraines. L'installation rejette également du HT; cependant, celui-ci nous intéresse principalement en raison du fait qu'une petite portion est convertie en HTO. Le HT en soi a un coefficient de dose beaucoup plus petit et n'est pas transféré dans la chaîne alimentaire humaine.

Les concentrations de tritium dans l'air ont été modélisées à l'aide du programme IMPACT, qui contient un modèle de panache gaussien à moyenne de zone en régime permanent, pour calculer les limites opérationnelles dérivées. Le modèle a utilisé les émissions annuelles de 2006 (74 000 GBq/a[1]) et les données météorologiques de 2006. Pour tester le modèle atmosphérique, les concentrations prévues de tritium au niveau du sol pour 2006 ont été comparées aux concentrations moyennes annuelles mesurées pour la même année à 31 endroits différents autour du site (Figure 5.1), à des distances allant de 250 m à 2 km. La surveillance de l'air a été effectuée par Énergie atomique du Canada limitée (EACL) à l'aide d'un système d'échantillonnage passif.

[1] Comprend les émissions de HTO, plus 2 % des émissions de HT (0,02 x 213 083 GBq/a), qui sont vraisemblablement converties en HTO dans l'air au niveau du sol.

Les concentrations atmosphériques modélisées et les concentrations mesurées sont présentées au Tableau 5.1. Leur rapport est illustré à la Figure 5.2. Le modèle atmosphérique explique 85 % de la variation spatiale mesurée dans la concentration de tritium ($R^2 = 0,85$). Le modèle mis en œuvre ici ne représente pas l'élévation de panache due au gradient de température, qui pourrait réduire légèrement les concentrations moyennes modélisées au niveau du sol en champ proche. Ici, les prévisions du modèle étaient en moyenne 83 % plus élevées que les concentrations mesurées. Environ 60 % des prévisions du modèle correspondaient à un facteur de deux des concentrations mesurées. Le rendement pourrait être amélioré en représentant l'élévation du panache, mais cela est difficile dans un modèle à moyenne annuelle en raison des variations saisonnières dans le gradient de température.

Les résultats sont conformes aux observations effectuées par Chouhan et Davis (2001) selon lesquelles les prévisions du modèle gaussien en régime permanent se situent à moins d'un facteur de deux des concentrations moyennes annuelles mesurées dans la majorité des stations de surveillance autour des centrales nucléaires, à des distances se situant entre 700 m et 3 km. Les données pour les centrales nucléaires laissent supposer une surprévision d'environ 50 % en moyenne.

Les concentrations de tritium dans l'eau du sol ont été modélisées à partir des émissions atmosphériques annuelles de 2005 (270 000 GBq/a) et 2006 (74 000 GBq/a). Les concentrations atmosphériques modélisées pour 2006 ont été examinées précédemment. La répartition du tritium atmosphérique dans l'eau du sol a été modélisée, comme indiqué à la Section 4.1.1 (Équation 4.1). Le tritium dans l'eau du sol (profondeur d'échantillonnage de 10 cm) a été mesuré par EACL en septembre 2006 et en septembre 2007. Le décalage d'un an dans les données de surveillance du sol reflète le décalage prévu dans la répartition du tritium dans le sol. Les émissions ont diminué considérablement pendant la période de 2005 à 2007 et s'élevaient seulement à 6 348 GBq/a en 2007.

Les prévisions du modèle pour l'eau du sol ont été faites dans des puits de surveillance et ont été comparées à des échantillons prélevés dans le sol à proximité. Tous les points d'échantillonnage de sol se trouvaient à une distance de moins de 100 m de la cheminée (Figure 5.3). Le Tableau 5.2 illustre les concentrations de tritium modélisées et mesurées dans l'eau du sol. Les concentrations prévues pour les émissions de 2006 étaient du même ordre de grandeur que les concentrations mesurées en 2007. La majorité (82 %) des prévisions du modèle correspondaient à un facteur de deux des concentrations mesurées. Le rapport concentration estimée/concentration mesurée se situait entre 0,31 et 2,32, et la moyenne était de 1,35. Ainsi, en moyenne, les prévisions étaient environ 35 % plus élevées que les valeurs mesurées, ce qui suppose un délai d'absorption par le sol d'environ un an.

Il est important de remarquer que le modèle de sol de la Section 4.1.1 ne dépend pas du temps. Il ne tient compte d'aucuns temps mort. Il suppose que le sol est à l'équilibre avec l'air sur une base annuelle moyenne. Pendant les périodes où la concentration de tritium dans l'air a diminué considérablement, ce modèle avait tendance à sous-estimer la concentration dans l'eau du sol (comparer les données modélisées de 2006 aux données mesurées de 2006 au Tableau 5.2). Réciproquement, pendant les périodes de forte augmentation de la concentration atmosphérique, le modèle avait tendance à surestimer la concentration dans l'eau du sol.

Le degré de décalage observé dans l'eau du sol dépend de la profondeur d'échantillonnage du sol et de facteurs propres au site qui déterminent les taux d'infiltration nets et, par conséquent, le temps de séjour dans l'eau du sol en zone peu profonde. Ces facteurs peuvent varier considérablement entre les stations d'échantillonnage en fonction de la rugosité du sol, du compactage et de la végétation.

La concentration dans les échantillons d'eau du sol est beaucoup plus élevée à proximité immédiate de la cheminée (SS14, SS15, SS16, SS29, SS30, SS31). Les eaux de ruissellement des toits sont également rejetées dans cette zone. En 2006, la concentration de tritium dans les eaux de ruissellement des toits était en moyenne de 5 107 Bq/L. Les concentrations dans le ruissellement pendant le traitement étaient en moyenne de 15 288 Bq/L (Tableau 5.3). D'après les émissions plus importantes de 2005, le ruissellement des toits était de l'ordre de 18 600 Bq/L sur la base d'une moyenne annuelle. Les concentrations plus élevées dans l'eau du sol à proximité immédiate de la cheminée sont probablement attribuables au rinçage et/ou à la condensation qui s'écoule sur les parois de la cheminée. Les échantillons de l'égouttement des cheminées durant les précipitations en 2006 étaient en moyenne de 2 298 133 Bq/L durant le traitement et de 3 000 Bq/L à d'autres moments.

Les concentrations de tritium dans les eaux souterraines aux puits de surveillance étaient estimées d'après l'historique des émissions de l'installation entre 1991 et 2006. Les prévisions du modèle pour les puits ont été comparées aux mesures effectuées en octobre 2007 pour la concentration de tritium dans les eaux souterraines.

La première étape de la prévision des concentrations dans l'eau des puits consiste à modéliser les concentrations atmosphériques et les concentrations dans l'eau du sol pour chaque puits et année d'émission. Les concentrations dans l'air et dans l'eau du sol ont été estimées à l'aide du modèle IMPACT. Les émissions et les concentrations de tritium dans l'eau du sol modélisées pour chaque puits, chaque année, sont présentées au Tableau 5.4.

La deuxième étape de la prévision des concentrations dans l'eau de puits consiste à estimer le temps de parcours dans les eaux souterraines entre le sol peu profond et la profondeur à laquelle se trouve le filtre du puits, et à tenir compte de la désintégration du tritium dans l'eau du sol lorsqu'il descend verticalement vers le filtre du puits. C'est le modèle décrit à la Section 4.1.1 (Équation 4.2). Pour un taux d'infiltration verticale de 0,5 m/a, la date d'origine de l'eau du sol a été déterminée pour chaque puits, comme indiqué au Tableau 5.5. La concentration modélisée de l'eau du sol pour cette date (d'après le Tableau 5.4) est également illustrée, ainsi que la concentration estimée après la désintégration durant le transit vers le filtre de puits. La concentration estimée dans l'eau du puits est comparée à celle mesurée en 2007.

Le rapport concentration estimée/concentration mesurée se situe entre 0,07 et 95, avec une moyenne géométrique de 1,52. Environ 65 % des puits avaient un facteur de trois fois la valeur mesurée. Des huit prévisions qui se trouvent en dehors de cette plage, sept étaient surestimées et une était une sous-estimée. La sous-estimation s'est produite au site MW07-18 qui est proche de la cheminée et a probablement été influencée par la fonte des neiges qui s'étaient accumulées dans cette zone.

Parmi les sept concentrations d'eau de puits ayant fait l'objet d'une surestimation, six puits étaient échantillonnés à la surface du socle rocheux et ont probablement subi les effets de l'écoulement des eaux souterraines horizontales le long de la surface du socle rocheux. Cela s'explique par l'analyse du tritium dans l'eau du sol circulant dans les déblais de forage, où les concentrations étaient plus élevées que celles mesurées par la suite dans l'eau de puits. Le profil de la sonde pédologique pour le site MW07-21 (Figure 5.4) illustre cet état de choses.

La Figure 5.5 est une représentation graphique de la concentration modélisée en fonction de la concentration mesurée du tritium dans l'eau de puits. De façon générale, la concordance est raisonnable, avec des écarts plus importants à quelques puits. Les écarts sont généralement explicables par les sources ou les caractéristiques des aquifères qui ne sont pas représentées dans le modèle.

La vitesse verticale des eaux souterraines varie d'un endroit à l'autre à cause des conditions du sol de subsurface. Même si 0,5 m/a est un bon ajustement des données de puits pour la plupart des sites, des vitesses plus élevées sont proposées pour certains puits choisis dans le substrat rocheux. Par exemple, les concentrations de tritium aux sites MW07-28, MW07-29 et MW07-30 ne peuvent dater du début des années 1980, avant l'exploitation de l'installation, comme calculé à partir des vitesses de 0,5 m/a. Une vitesse plus proche de 0,9 m/a est indiquée pour ces puits.

Tableau 5.1 : Tritium atmosphérique modélisé et mesuré à l'installation de SRBT

Lieu	Tritium atmosphérique (Bq/m³)		Modélisé/mesuré
	Mesuré	Modélisé	
1	11,42	19,33	1,69
2	6,31	12,01	1,90
3	2,48	4,54	1,83
4	19,05	46,31	2,43
5	7,07	10,80	1,53
6	3,42	7,86	2,30
7	2,20	3,14	1,42
8	15,96	8,16	0,51
9	9,11	7,50	0,82
10	5,85	3,19	0,54
11	7,56	23,43	3,10
12	1,16	3,29	2,83
13	0,57	1,11	1,94
14	0,39	0,97	2,49
15	15,12	21,45	1,42
16	3,47	5,27	1,52
17	0,28	0,68	2,42
18	30,65	20,10	0,66
19	13,81	14,14	1,02
20	4,10	5,70	1,39
21	1,77	1,80	1,02
22	21,45	26,97	1,26
23	5,99	17,70	2,95
24	3,33	9,91	2,98
25	26,14	42,32	1,62
26	6,48	21,75	3,36
27	3,43	6,24	1,82
28	1,62	2,16	1,33
29	24,21	65,66	2,71
30	33,24	96,14	2,89
31	35,66	41,49	1,16

Voir la Figure 5.1 pour les emplacements des stations de surveillance.

Tableau 5.2 : Tritium modélisé et mesuré dans l'eau du sol à l'installation de SRBT

Lieu d'échantillonnage	Mesuré (Bq/L)			Modélisé (Bq/L)[1]		Lieu modélisé	2006 modélisé/ 2007 mesuré
	2006	2007[2]		2005	2006		
SRB-SS1	2 374	1 218	L	-	-		
SRB-SS2	1 634	1 340	L	5 738	1 015	MW06-1	0,76
SRB-SS3	1 004	535	L	3 108	369	MW07-12	0,69
SRB-SS4	804	566	L	5 271	902	MW07-31	1,59
SRB-SS5	1 598	599	L	5 738	1015	MW06-1	1,69
SRB-SS6	1 293	592	L	3 108	369	MW07-12	0,62
SRB-SS7	1 285	706	L	5 271	902	MW07-31	1,28
SRB-SS8	1 580	1 752	L	-	-		
SRB-SS9	2 080	1 694		-	-		
SRB-SS10	19 734	3 807		-	-		
SRB-SS10-A	8 923	913	L	-	-		
SRB-SS11	20 113	901	L	-	-		
SRB-SS12	15 344	6 036		-	-		
SRB-SS13	13 277	15 202		-	-		
SRB-SS14	31 353	60 450		-	-		
SRB-SS15	248 602	39 877		-	-		
SRB-SS16	366 747	17 115		-	-		
SRB-SS17	3 831	1 053		-	-		
SRB-SS18	1 439	961		1 719	293	MW07-26	0,31
SRB-SS19	695	705		-	-		
SRB-SS20	1 854	746		-	-		
SRB-SS21	684	834		-	-		
SRB-SS22	1 267	1 026		-	-		
SRB-SS23	-	822	L	-	-		
SRB-SS24	-	612	L	5 309	1 164	MW07-25	1,90
SRB-SS25	-	668	L	-	-		
SRB-SS26	-	610	L	6 533	1 414	MW07-24	2,32
SRB-SS27	-	637		6 147	1 236	MW07-23	1,94
SRB-SS28	-	692		6 147	1 236	MW07-23	1,79
SRB-SS29	-	15 655	-	-			
SRB-SS30	-	1 066 838	-	-			
SRB-SS31	-	16,774	-	-			

[1] Basé sur les émissions : 2005 – 2,7 x 10^{14} Bq/a; 2006 – 7,4 x 10^{13} Bq/a
[2] L= moins que

Tableau 5.3 : Tritium dans le ruissellement des toits, l'égouttement des cheminées et l'eau stagnante près des cheminées durant les précipitations à l'installation de SRBT

Condition de fonctionnement	Ruissellement des toits[1] (Bq/L)	Égouttement des cheminées[2] (Bq/L)	Eau stagnante (Bq/L)
En traitement	15 288	2 298 133	19 339
Pas en traitement	540	3 009	664
Moyenne de 2006	5 107	-	-

[1] *Avril à août 2006*

[2] *Octobre à décembre 2006*

Tableau 5.4 : Tritium modélisé dans l'eau du sol à l'emplacement des puits de l'installation de SRBT au cours des années précédentes

Année	Émissions (GBq/a)	Ruissellement des toits (Bq/L)	MW06-1 MW07-13 MW07-30	MW06-2 MW07-11	MW06-3	MW06-8 MW07-12	MW06-9 MW07-15	MW06-10	MW07-14	MW07-16 MW07-17	MW07-18 MW07-29 MW07-34	MW07-19	MW07-20	MW07-21	MW07-22 MW07-31	MW07-23	MW07-24 MW07-32	MW07-25 MW07-33	MW07-26	MW07-27 MW07-28 MW07-35	MW07-36	MW07-37
1991	160 000	23 250	4 557	1 225	2 151	3 016	273	85 076	2 614	2 120	5 636	4 030	1 925	3 296	4 425	4 698	4 736	3 779	1 737	5 195	6 197	3 705
1992	260 000	37 968	7 441	2 001	3 512	4 924	446	138 931	4 269	3 462	9 203	6 582	3 143	5 382	7 226	7 672	7 734	6 171	2 836	8 484	10 119	6 050
1993	150 000	22 311	4 373	1 176	2 064	2 894	262	81 640	2 509	2 034	5 408	3 868	1 847	3 163	4 246	4 508	4 545	3 627	1 666	4 986	5 946	3 555
1994	220 000	32 823	6 433	1 730	3 036	4 257	385	120 104	3 691	2 992	7 956	5 690	2 717	4 653	6 247	6 633	6 686	5 335	2 452	7 335	8 748	5 230
1995	260 000	38 189	7 484	2 013	3 533	4 953	448	139 740	4 294	3 482	9 257	6 629	3 162	5 414	7 268	7 717	7 779	6 207	2 852	8 534	10 178	6 085
1996	620 000	90 876	17 810	4 789	8 407	11 787	1 067	332 529	10 218	8 285	22 027	15 753	7 524	12 882	17 296	18 363	18 511	14 771	6 788	20 307	24 220	14 480
1997	1 200 000	134 746	25 798	4 853	11 601	13 972	292	183 077	19 616	15 923	42 462	30 418	10 222	19 042	23 698	27 638	29 370	23 870	7 728	21 849	34 324	18 129
1998	1 600 000	178 212	34 120	6 418	15 343	18 479	386	242 134	25 944	21 060	56 160	40 230	13 520	25 184	31 343	36 554	38 845	31 570	10 221	28 897	45 396	23 976
1999	770 000	86 363	16 535	3 110	7 435	8 955	187	117 339	12 573	10 206	27 215	19 496	6 552	12 204	15 189	17 714	18 824	15 299	4 953	14 004	21 999	11 619
2000	1 700 000	185 512	35 517	6 681	15 971	19 236	402	252 051	27 006	21 922	58 460	41 878	14 074	26 216	32 627	38 051	40 436	32 863	10 640	30 080	47 255	24 958
2001	1 300 000	142 461	27 275	5 130	12 265	14 772	309	193 559	20 739	16 835	44 894	32 160	10 808	20 132	25 055	29 221	31 052	25 237	8 171	23 100	36 289	19 166
2002	930 000	103 913	19 895	3 742	8 946	10 775	225	141 184	15 127	12 280	32 746	23 458	7 883	14 684	18 276	21 314	22 650	18 408	5 960	16 849	26 469	13 980
2003	550 000	61 039	11 686	2 198	5 255	6 329	132	82 932	8 886	7 213	19 235	13 779	4 631	8 626	10 735	12 520	13 304	10 813	3 501	9 897	15 548	8 212
2004	420 000	46 531	8 909	1 676	4 006	4 825	101	63 221	6 774	5 499	14 663	10 504	3 530	6 576	8 184	9 544	10 142	8 243	2 669	7 545	11 853	6 260
2005	270 000	29 970	5 738	1 079	2 580	3 108	65	40 720	4 363	3 542	9 444	6 766	2 274	4 235	5 271	6 147	6 533	5 309	1 719	4 860	7 634	4 032
2006	74 000	5 107	1 015	90	515	369	1	9 338	492	228	700	474	449	943	902	1 236	1 414	1 164	293	643	1 475	592

Tableau 5.5 : Tritium modélisé et mesuré dans les eaux souterraines des puits de surveillance de l'installation de SRBT

Puits de surveillance	Distance aux cheminées (m)	Tritium mesuré en oct. 2007 (Bq/L)	Profondeur du filtre (m)	Origine de l'eau du sol[1]		Tritium modélisé		Modélisé/ mesuré
				Années antérieures	Date	Eau du sol (Bq/L)	Eaux souterraines après désintégration (Bq/L)	
MW06-1 Argile	50	43 586	4,34	8,68	1998	34 120	20 903	0,48
MW06-2 Argile	75	4 050	4,54	9,08	1998	6 418	3 844	0,95
MW06-3 Argile	50	3 139	5,36	10,72	1996	8 407	4 590	1,46
MW06-8 Argile	55	311	5,98	11,96	1995	4 953	2 522	8,11
MW06-9 Argile	25	1 489	4,64	9,28	1998	386	229	0,15
MW06-10 SSR	0	29 795	6,69	13,38	1994	120 104	56 434	1,89
MW07-11 SSR	75	400	6,31	12,62	1994	1 730	849	2,12
MW07-12 SSR	55	194	6,61	13,22	1994	4 257	2 018	10,40
MW07-13 SSR	50	10 057	5,72	11,44	1996	17 810	9 337	0,93
MW07-14 SSR	40	2 357	6,4	12,80	1994	3 691	1 792	0,76
MW07-15 SSR	25	227	6,32	12,64	1994	385	189	0,83
MW07-16 SSR	15	6 646	6,23	12,46	1995	3 482	1 723	0,26
MW07-17 SR	15	103	13,7	27,40	1980	-	-	-
MW07-18 SSR	10	58 139	6,38	12,76	1994	7 956	3 871	0,07
MW07-19 SSR	20	4 229	6,59	13,18	1994	5 690	2 704	0,64
MW07-20 SSR	90	628	6,97	13,94	1993	1 847	841	1,34
MW07-21 SSR	110	102	6,85	13,70	1993	3 163	1 460	14,31
MW07-22 SSR	70	557	6,27	12,54	1994	6 247	3 078	5,53
MW07-23 SSR	90	595	5,16	10,32	1997	29 370	16 402	27,57
MW07-24 SSR	115	102	5,72	11,44	1996	18 511	9 704	95,14
MW07-25 SSR	105	1 230	5,93	11,86	1995	6 207	3 178	2,58
MW07-26 SSR	50	2 731	6,74	13,48	1994	2 452	1 146	0,42
MW07-27 SSR	55	6 959	7,46	14,92	1992	8 484	3 654	0,53
MW07-28 SR	55	8 088	13,73	27,46	1980	-	-	-
MW07-29 SR	10	38 797	12,48	24,96	1982	-	-	-
MW07-30 SR	50	14 185	13,22	26,44	1981	-	-	-
MW07-31 SR	70	801	12,46	24,92	1982	-	-	-
MW07-32 SR	115	143	12,46	24,92	1982	-	-	-
MW07-33 SR	105	678	13,61	27,22	1980	-	-	-
MW07-34 SR	10	45 544	8,7	17,40	1990	-	-	-
MW07-35 SR	55	14 824	8,66	17,32	1990	-	-	-
MW07-36 SR	80	9 100	8,54	17,08	1990	-	-	-
MW07-37 SR	60	3 297	8	16,00	1991	3 705	1 502	0,46

SR = Socle rocheux, SSR = Surface du socle rocheux

[1] La date d'origine suppose une vitesse verticale de 0,5 m/a; il s'agit d'une valeur courante, mais elle peut varier d'un endroit à l'autre selon les conditions du sol de subsurface.

Figure 5.1 : Lieux d'échantillonnage de l'air sur le site de SRBT

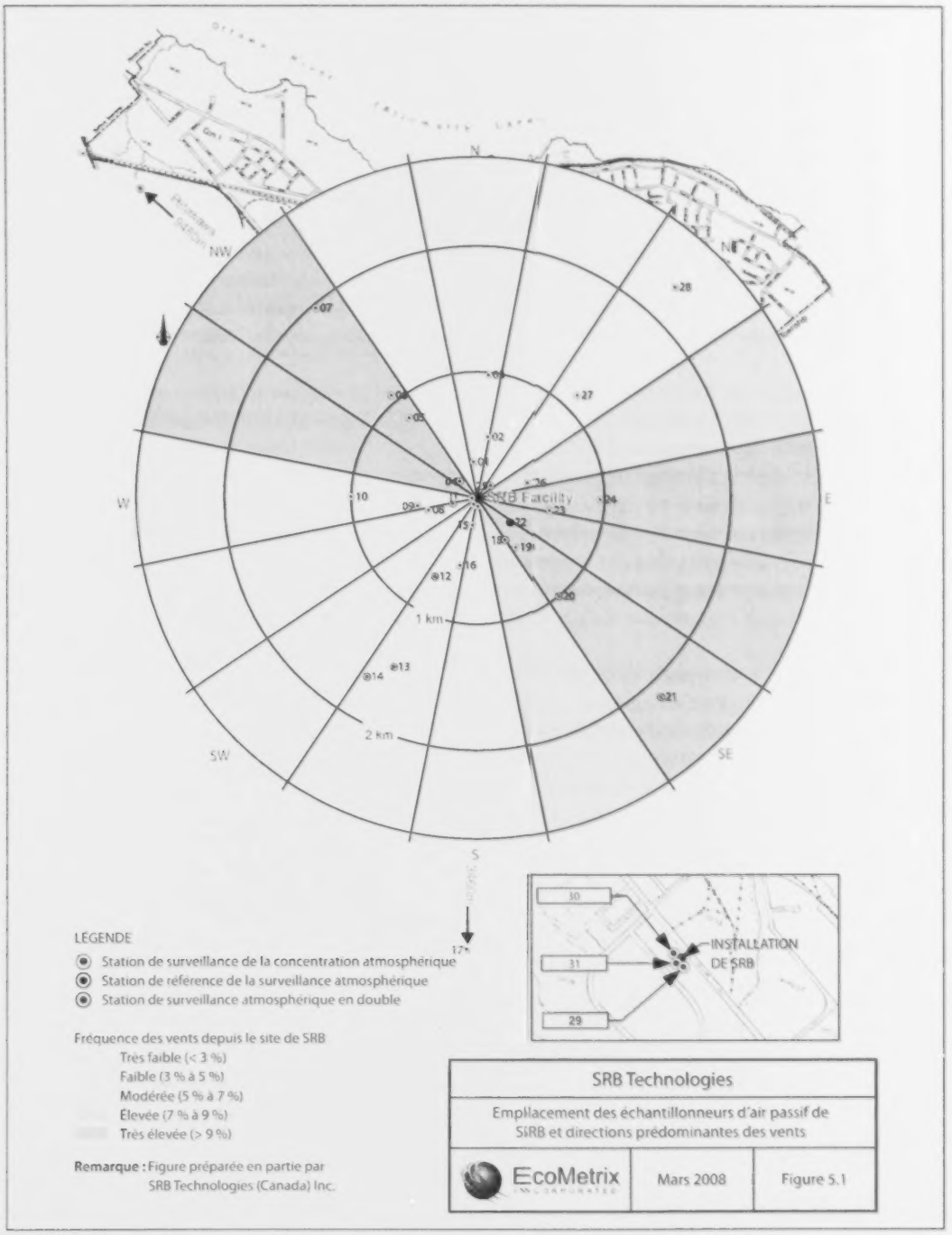


Tableau 5.5 : Tritium modélisé et mesuré dans les eaux souterraines des puits de surveillance de l'installation de SRBT

Puits de surveillance	Distance aux cheminées (m)	Tritium mesuré en oct. 2007 (Bq/L)	Profondeur du filtre (m)	Origine de l'eau du sol[1]		Tritium modélisé		Modélisé/ mesuré
				Années antérieures	Date	Eau du sol (Bq/L)	Eaux souterraines après désintégration (Bq/L)	
MW06-1 Argile	50	43 586	4,34	8,68	1998	34 120	20 903	0,48
MW06-2 Argile	75	4 050	4,54	9,08	1998	6 418	3 844	0,95
MW06-3 Argile	50	3 139	5,36	10,72	1996	8 407	4 590	1,46
MW06-8 Argile	55	311	5,98	11,96	1995	4 953	2 522	8,11
MW06-9 Argile	25	1 489	4,64	9,28	1998	386	229	0,15
MW06-10 SSR	0	29 795	6,69	13,38	1994	120 104	56 434	1,89
MW07-11 SSR	75	400	6,31	12,62	1994	1 730	849	2,12
MW07-12 SSR	55	194	6,61	13,22	1994	4 257	2 018	10,40
MW07-13 SSR	50	10 057	5,72	11,44	1996	17 810	9 337	0,93
MW07-14 SSR	40	2 357	6,4	12,80	1994	3 691	1 792	0,76
MW07-15 SSR	25	227	6,32	12,64	1994	385	189	0,83
MW07-16 SSR	15	6 646	6,23	12,46	1995	3 482	1 723	0,26
MW07-17 SR	15	103	13,7	27,40	1980	-	-	-
MW07-18 SSR	10	58 139	6,38	12,76	1994	7 956	3 871	0,07
MW07-19 SSR	20	4 229	6,59	13,18	1994	5 690	2 704	0,64
MW07-20 SSR	90	628	6,97	13,94	1993	1 847	841	1,34
MW07-21 SSR	110	102	6,85	13,70	1993	3 163	1 460	14,31
MW07-22 SSR	70	557	6,27	12,54	1994	6 247	3 078	5,53
MW07-23 SSR	90	595	5,16	10,32	1997	29 370	16 402	27,57
MW07-24 SSR	115	102	5,72	11,44	1996	18 511	9 704	95,14
MW07-25 SSR	105	1 230	5,93	11,86	1995	6 207	3 178	2,58
MW07-26 SSR	50	2 731	6,74	13,48	1994	2 452	1 146	0,42
MW07-27 SSR	55	6 959	7,46	14,92	1992	8 484	3 654	0,53
MW07-28 SR	55	8 088	13,73	27,46	1980	-	-	-
MW07-29 SR	10	38 797	12,48	24,96	1982	-	-	-
MW07-30 SR	50	14 185	13,22	26,44	1981	-	-	-
MW07-31 SR	70	801	12,46	24,92	1982	-	-	-
MW07-32 SR	115	143	12,46	24,92	1982	-	-	-
MW07-33 SR	105	678	13,61	27,22	1980	-	-	-
MW07-34 SR	10	45 544	8,7	17,40	1990	-	-	-
MW07-35 SR	55	14 824	8,66	17,32	1990	-	-	-
MW07-36 SR	80	9 100	8,54	17,08	1990	-	-	-
MW07-37 SR	60	3 297	8	16,00	1991	3 705	1 502	0,46

SR = Socle rocheux, SSR = Surface du socle rocheux

[1] *La date d'origine suppose une vitesse verticale de 0,5 m/a; il s'agit d'une valeur courante, mais elle peut varier d'un endroit à l'autre selon les conditions du sol de subsurface.*

Figure 5.1 : Lieux d'échantillonnage de l'air sur le site de SRBT

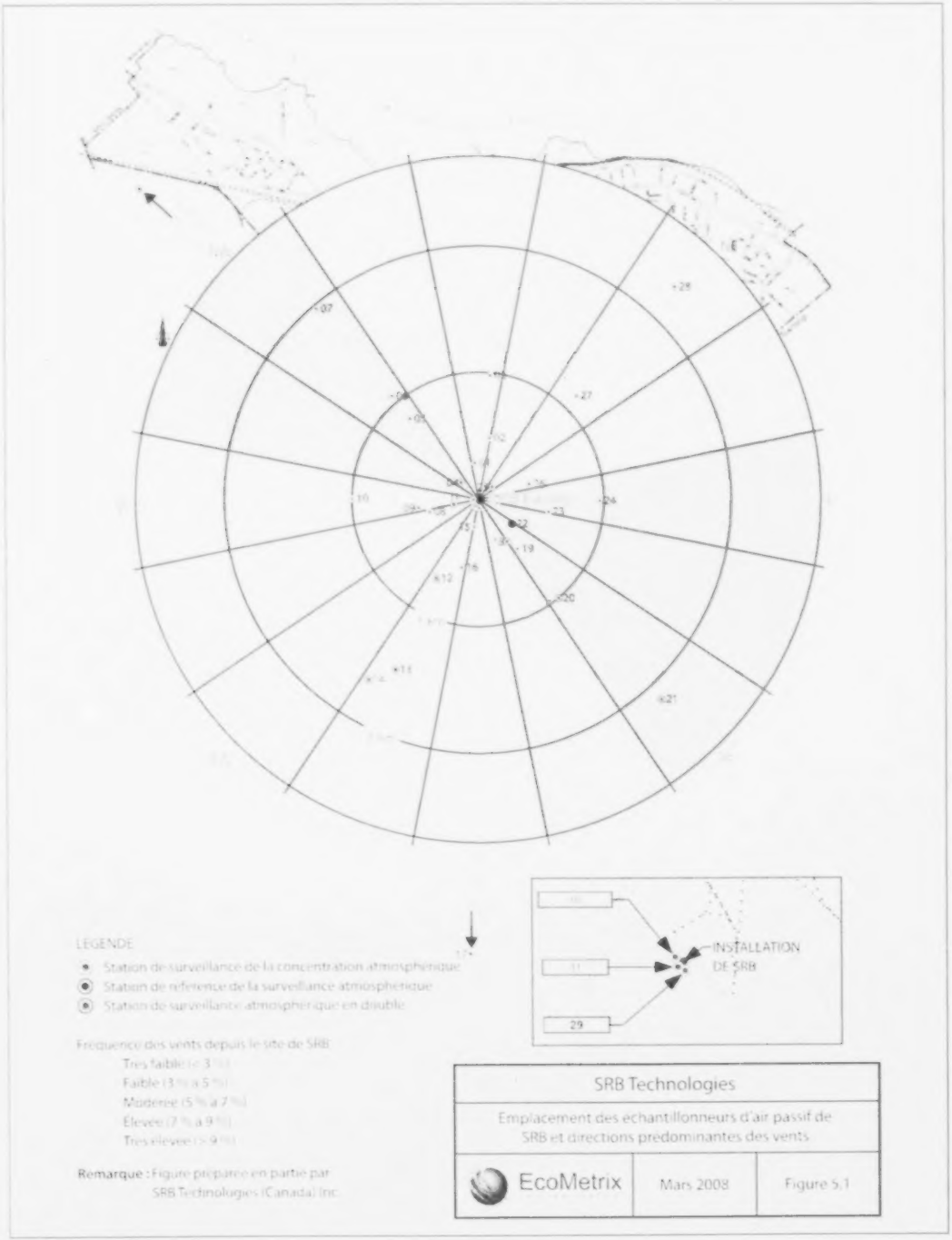


Figure 5.2 : Tritium modélisé en fonction du tritium mesuré dans l'air à l'installation de SRBT, 2006

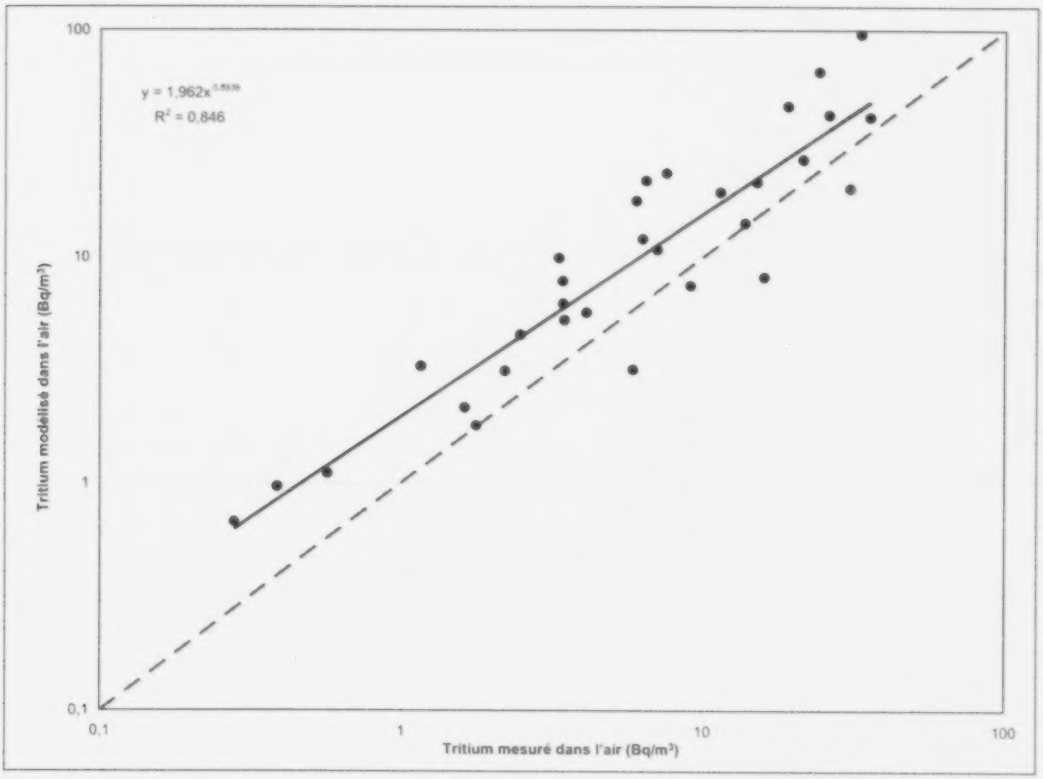


Figure 5.3 : Lieux d'échantillonnage de l'eau du sol et des eaux souterraines à l'installation de SRBT

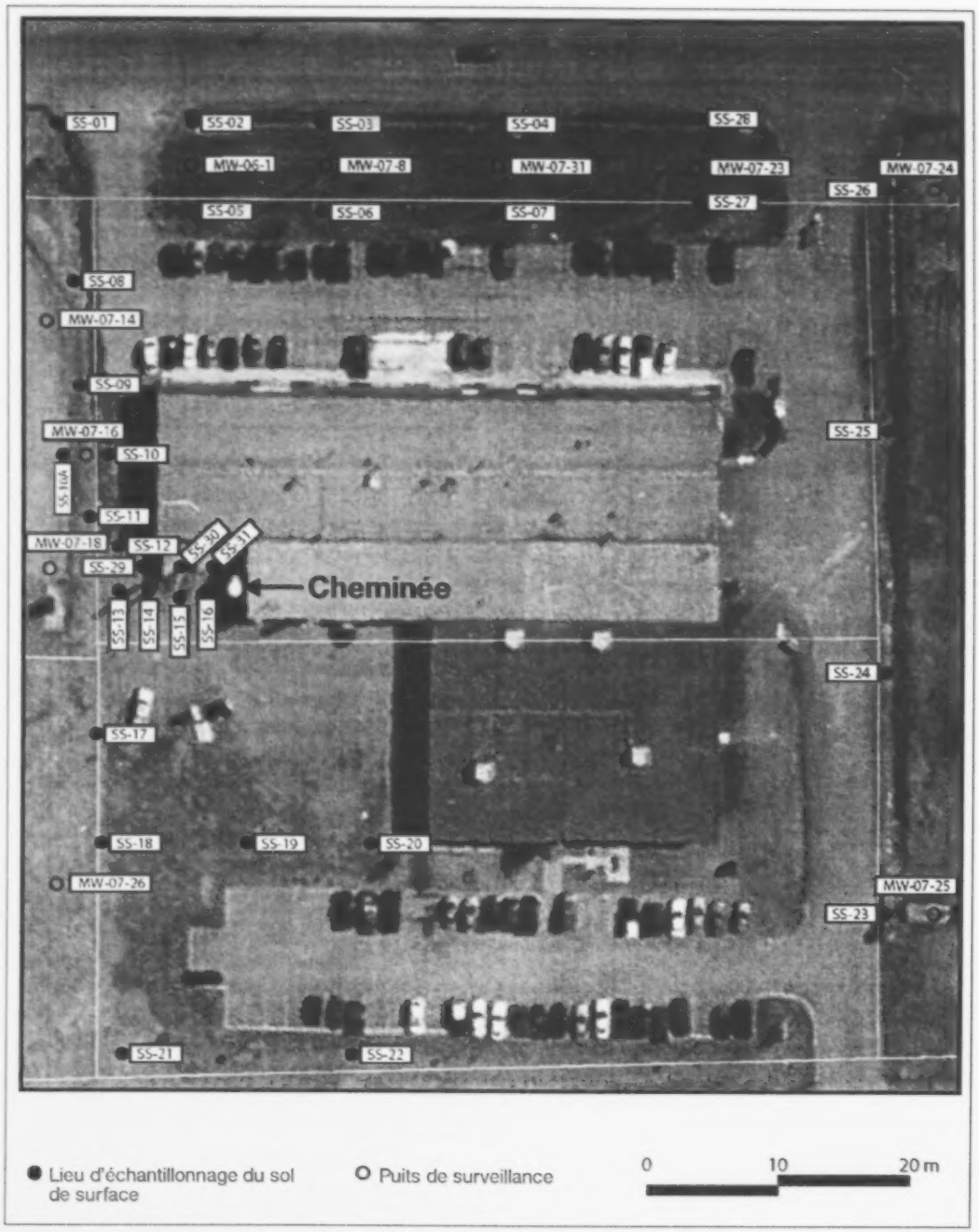


Figure 5.3 : Lieux d'échantillonnage de l'eau du sol et des eaux souterraines à l'installation de SRBT

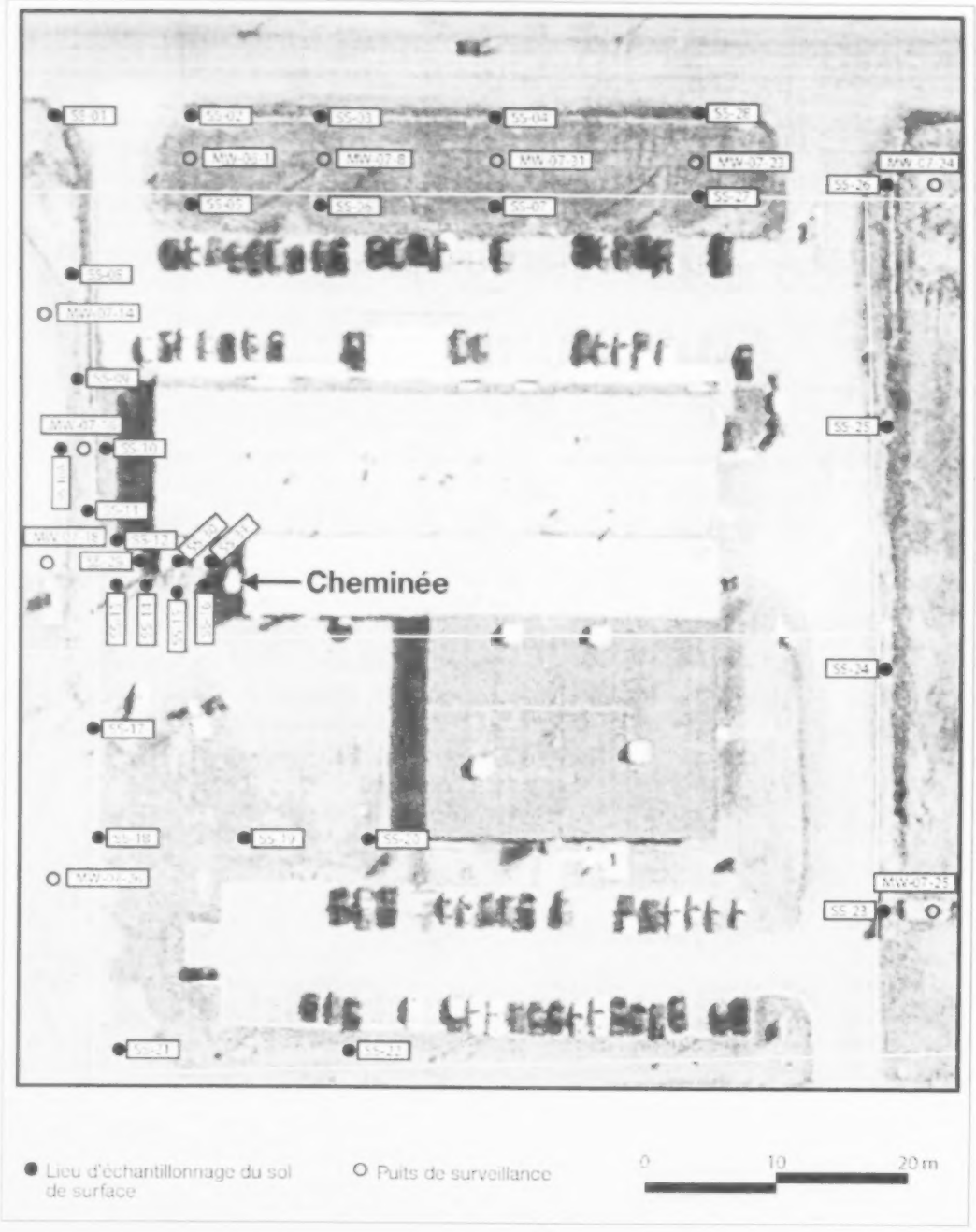


Figure 5.4 : Concentrations du tritium dans l'eau du sol et dans les eaux souterraines à l'emplacement MW07-21 sur le site de SRBT

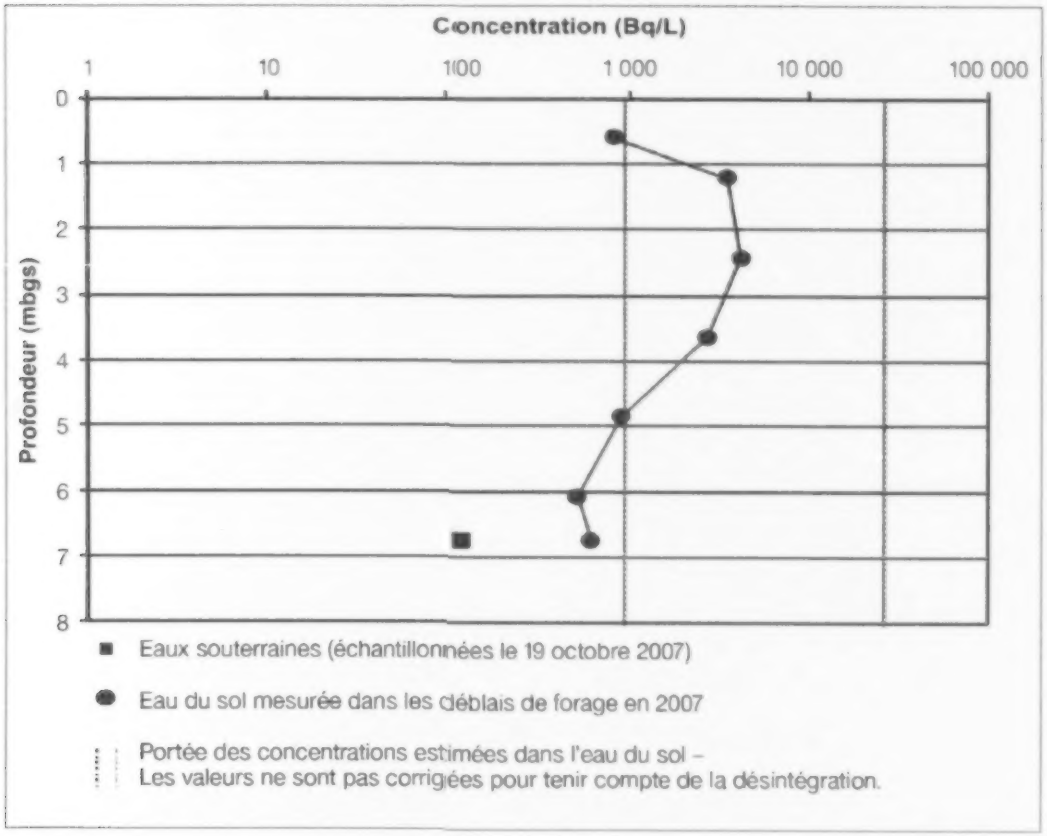
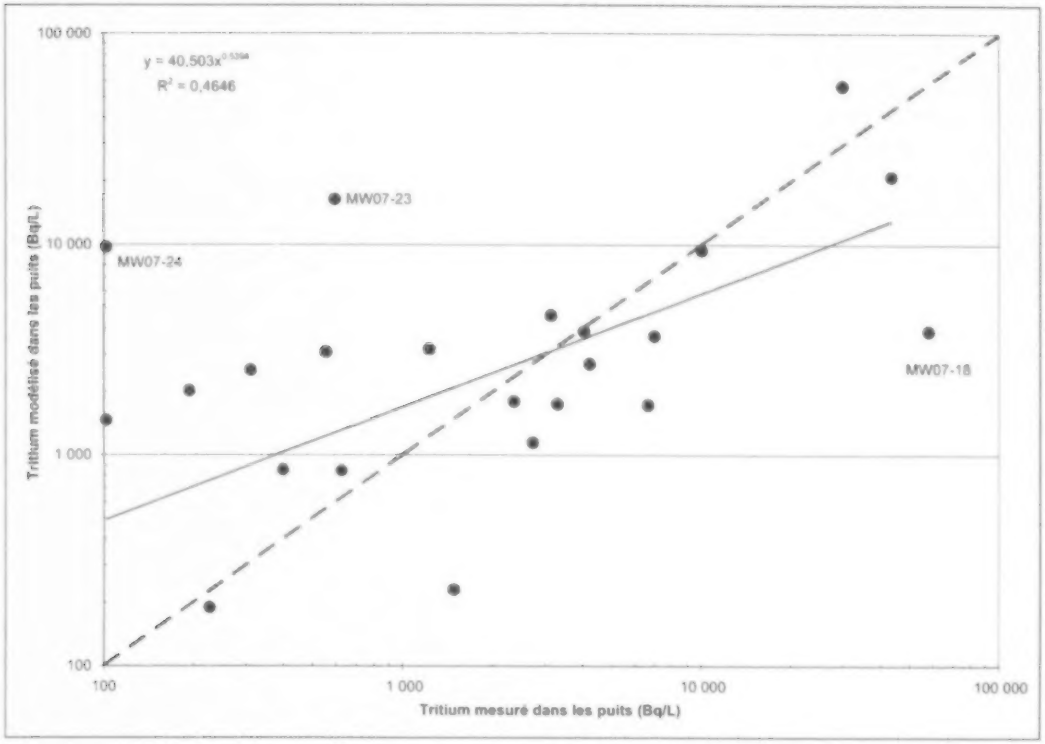


Figure 5.5 : Tritium modélisé en fonction du tritium mesuré dans les puits de SRBT, en 2007



Les valeurs aberrantes aux emplacements MW07-23, MW07-24 et MW07-18 sont omises de la ligne d'ajustement.

5.1.2 Shield Source Incorporated

La modélisation de l'installation de SSI est basée sur l'information contenue dans son Rapport annuel sur la conformité 2007 (SSI, 2008). Le rapport présente les émissions de l'installation ainsi que les données relatives à la surveillance atmosphérique et à la surveillance de l'eau de surface pour des emplacements autour de l'installation, à des distances allant de 74 m à plusieurs kilomètres.

La présente étude porte principalement sur le tritium (HTO) dans l'air et dans les étangs ou les marais autour de l'installation. Les rivières et les ruisseaux sont également surveillés, mais on ne s'attend pas à ce qu'il y ait un équilibre avec les concentrations atmosphériques durant la brève période de transition dans la zone d'exposition aux émissions de l'installation. Certains puits privés sont également surveillés; cependant, la profondeur des puits n'est pas indiquée. L'information sur la profondeur est requise pour modéliser les puits.

Les données météorologiques pour Peterborough en 2007 ont été obtenues de l'Université Trent. Ces données contiennent l'écart-type dans la direction des vents, qui est requis pour calculer la classe de stabilité et la production de la distribution de fréquence à point triple (FPT). La FPT a été déterminée et utilisée pour modéliser le tritium dans l'air autour de l'installation. La hauteur de cheminée et le diamètre étaient respectivement de 9,1 m et de 0,5 m. La vitesse de sortie à la cheminée était de 8,2 m/s, d'après le débit d'air mesuré qui est de 3 415 pi^3/min. La température du gaz est censée être seulement de 1 °C au-dessus de la température ambiante (pas d'élévation de panache thermique). Une hauteur de 7 m a été supposée pour les bâtiments adjacents.

Les concentrations atmosphériques du tritium ont été modélisées à l'aide du programme IMPACT, qui contient un modèle de panache en régime permanent à moyenne de Gauss par secteur, comme indiqué dans la norme CSA (2008) N288.1. Le modèle utilisait les émissions annuelles de 2007 (24 900 GBq/a)[2] et les données météorologiques de 2007. À titre d'essai du modèle atmosphérique, les concentrations de tritium estimées au niveau du sol pour 2007 ont été comparées aux concentrations moyennes annuelles mesurées pour la même année à 16 endroits autour du site. La surveillance atmosphérique a été effectuée à l'aide d'échantillonneurs passifs, qui ont été analysés par Monserco Limited.

Les concentrations modélisées en fonction des concentrations mesurées dans l'atmosphère sont présentées au Tableau 5.6 et illustrées à la Figure 5.6. Les résultats indiquent que le modèle atmosphérique donne généralement une surestimation dans l'air en champ proche (habituellement d'un facteur de deux ou quatre), mais qu'il concorde généralement avec les mesures (avec un facteur de deux) à des distances de moins de 1 km (Figure 5.7). Les surestimations en champ proche dans cet exemple peuvent résulter du fait de ne pas avoir considéré l'élévation du panache thermique. Il s'agit d'un phénomène saisonnier.

[2] Comprend les émissions de HTO, plus 2 % des émissions de HT (0,02 x 84 700 GBq/a) qui devraient être converties en HTO dans l'air au niveau du sol.

Les concentrations modélisées en fonction des concentrations mesurées dans l'eau des étangs sont présentées au Tableau 5.7 et illustrées à la Figure 5.8. Les résultats indiquent qu'il y a une concordance raisonnable avec les valeurs mesurées dans l'eau des étangs. La majorité (58 %) des concentrations estimées se situaient à l'intérieur d'un facteur de deux des concentrations mesurées, et presque toutes les concentrations (92 %) se situaient à l'intérieur d'un facteur de trois. Le rapport estimé/mesuré se situait entre 0,37 et 3,66 et était en moyenne de 1,28. Les étangs en champ proche (W3, WG5, W4) présentent un intérêt particulier parce que, même s'il y a eu surestimation du tritium dans l'air à ces endroits (par un facteur de trois à quatre), l'eau des étangs modélisés a fait l'objet d'une sous-estimation (d'un facteur de deux à trois). Il est possible que les étangs en champ proche montrent l'influence des concentrations atmosphériques plus élevées au cours des années précédentes, comme indiqué par les données hydrologiques en amont, alors que le modèle suppose un équilibre instantané entre l'air et l'eau des étangs.

Tableau 5.6 : Tritium modélisé et mesuré dans l'air sur le site de SSI en 2007

Lieu	Distance (m)	Mesuré (Bq/m^3)	Modélisé (Bq/m^3)	Modélisé/mesuré
A1	74	7,22	22,72	3,15
A2	240	1,43	6,18	4,32
A3	210	3,05	7,35	2,41
A4	250	3,37	8,99	2,67
A5	220	2,96	10,24	3,46
A6	210	1,17	12,33	10,5
A7	200	1,2	4,02	3,35
A8	870	0,59	1,47	2,49
A9	1 500	0,49	0,93	1,89
A10	1 500	1,08	0,94	0,87
A11	1 200	1	1,41	1,41
A12	1 000	0,65	0,61	0,94
A13	1 000	0,53	0,82	1,54
A14	1 000	0,48	1,74	3,63
A15	2 500	0,39	0,36	0,92

Tableau 5.7 : Tritium modélisé et mesuré dans les étangs sur le site de SSI en 2007

Location	Distance (m)	Mesuré (Bq/L)	Modélisé (Bq/L)	Modélisé/mesuré
W3	170	1 872	1 101	0,59
W4	250	1 088	870,6	0,80
W6	210	652	1 162	1,78
W8	870	148	145,0	0,98
W9	1 500	82	92,58	1,13
W10	1 500	227	92,60	0,41
W11	1 200	50	140,5	2,81
W12	1 000	125	60,93	0,49
W13	1 200	50	80,82	1,62
W14	1 000	47	172,1	3,66
W15	2 500	50	36,54	0,73
WG5	220	1 778	658,8	0,37

Figure 5.6 : Tritium modélisé/mesuré dans l'air sur le site de SSI – Données de 2007

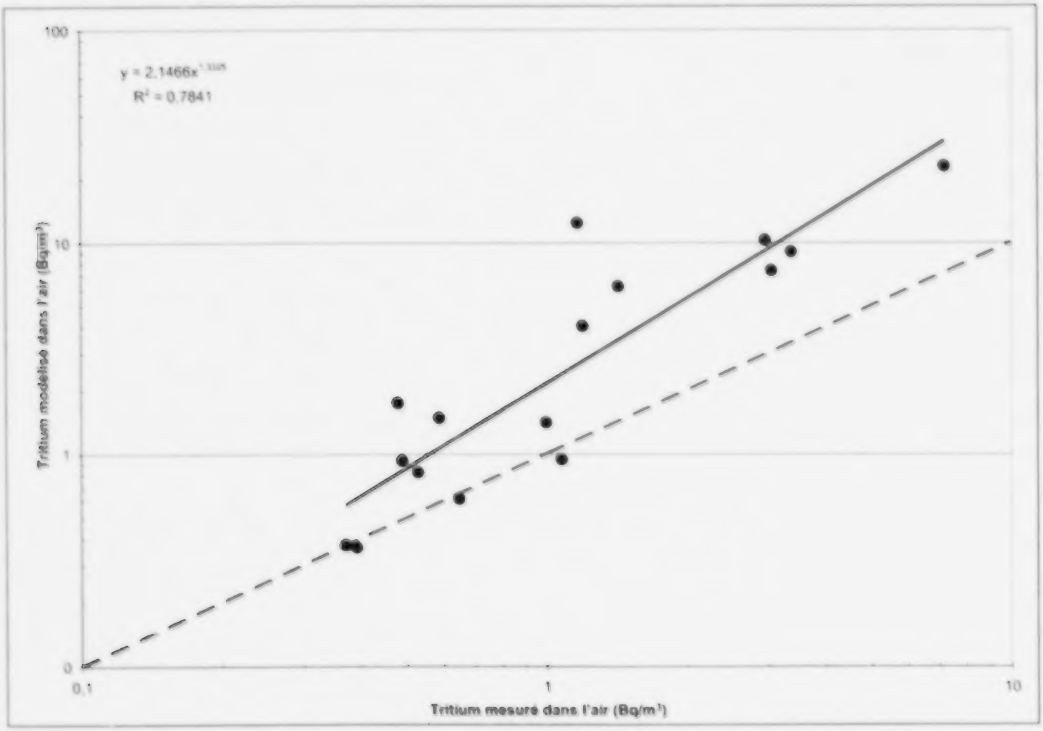


Figure 5.7 : Rapport de l'air modélisé à l'air mesuré en fonction de la distance sur le site de SSI – Données de 2007

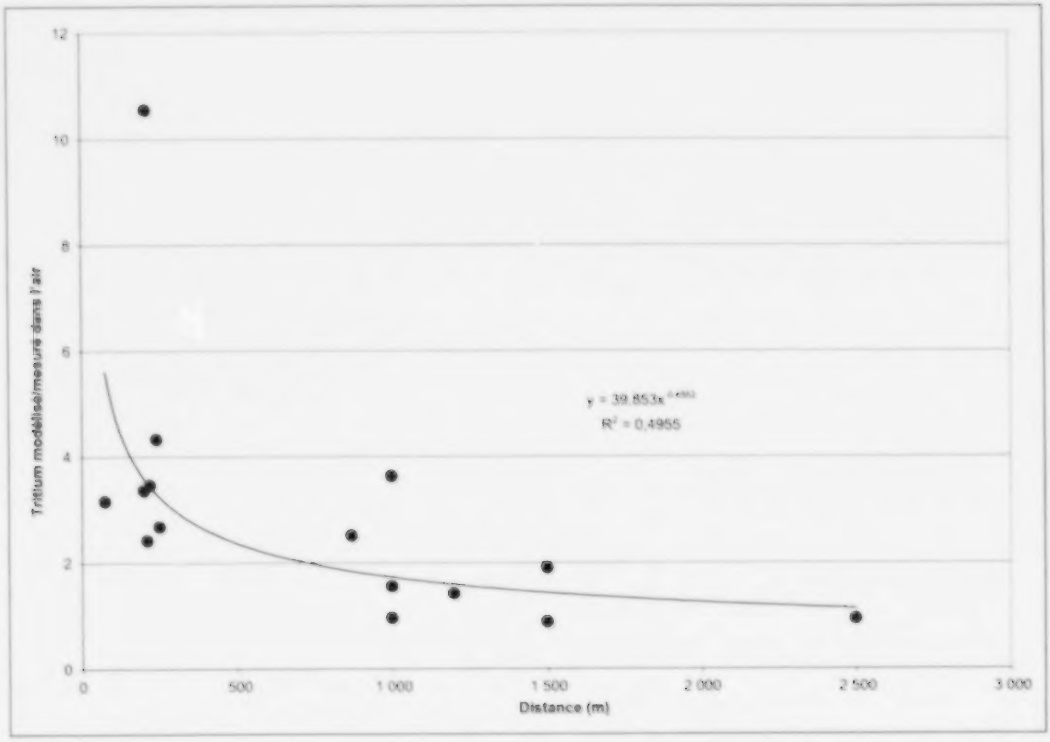
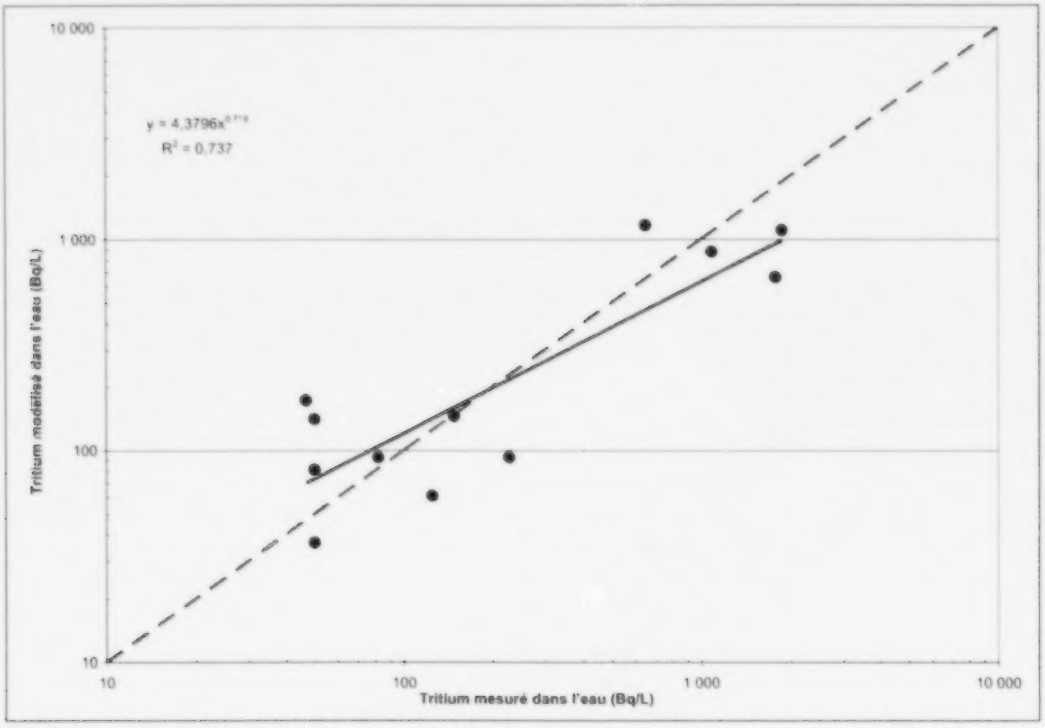


Figure 5.8 : Tritium modélisé/mesuré dans les étangs sur le site de SSI en 2007



5.2 Centrales nucléaires

Trois centrales nucléaires sont examinées dans la présente section. Les installations de Pickering Nuclear (PN) et de Darlington Nuclear (DN) sont exploitées par Ontario Power Generation (OPG) sur la rive nord du lac Ontario. L'installation de Bruce Nuclear (BN) est exploitée par Bruce Power près de Tiverton (Ontario) sur la rive nord du lac Huron. Des données disponibles et pertinentes pour la dispersion moyenne annuelle et pour la répartition du tritium dans l'environnement ont été utilisées. Les données annuelles ont été calculées sur une période d'un an.

5.2.1 Pickering (PN)

La modélisation de l'installation de PN a été effectuée à l'aide des informations tirées du document d'OPG intitulé *Résultats 2007 du Programme de surveillance environnementale du rayonnement ambiant* (Borromeo, 2008). Le rapport présente les émissions des installations ainsi que les données de surveillance de l'air et des précipitations pour des endroits autour de l'installation. Les stations de surveillance de l'air et des précipitations comprennent différents sites périphériques se trouvant dans un rayon de 2 km de l'installation, ainsi que des sites plus éloignés jusqu'à 10,4 km de l'installation.

Des échantillonneurs d'air actifs et passifs ont été utilisés. Les échantillons sont recueillis tous les trimestres et une moyenne est calculée pour obtenir la valeur moyenne annuelle. Les échantillonneurs passifs à OPG donnent généralement des résultats correspondant au double des résultats des échantillonneurs actifs[3]. Étant donné que seuls des échantillonneurs passifs se trouvent en champ lointain, des estimations ont été faites pour déterminer les résultats des échantillonneurs passifs pour certains sites périphériques où il n'y a que des échantillonneurs actifs.

Les concentrations de tritium dans l'air ont été modélisées à l'aide du programme IMPACT, qui contient un modèle de panache gaussien à moyenne de zone en régime permanent, comme indiqué dans la norme CSA (2008) N288.1. Le modèle a utilisé des émissions annuelles de 2007 (560 TBq/a de HTO) et des données météorologiques de 2007. À titre d'essai du modèle atmosphérique, les concentrations annuelles moyennes prévues au niveau du sol pour le tritium en 2007 ont été comparées aux concentrations annuelles moyennes mesurées pour la même année dans six sites périphériques et dans plusieurs emplacements en champ lointain.

Les concentrations atmosphériques modélisées et mesurées sont présentées au Tableau 5.8 et illustrées à la Figure 5.9. Les résultats indiquent que le modèle atmosphérique prévoit généralement une concentration de tritium correspondant à un facteur de deux des valeurs mesurées (à l'aide d'échantillonneurs passifs). Une prévision sur neuf (11 %) se trouve à l'extérieur de cette plage. La concentration atmosphérique a fait l'objet d'une surestimation à cet endroit (P4). En moyenne, les concentrations modélisées étaient environ 35 % plus élevées que les valeurs mesurées.

Il convient de noter que, lorsque les résultats des échantillonneurs actifs sont exacts, cela signifie que le modèle atmosphérique mis en œuvre ici donne des estimations plus élevées que celles suggérées au Tableau 5.8, soit environ le double.

L'eau du sol n'est pas mesurée de manière courante aux installations d'OPG; cependant, l'eau de pluie constitue une mesure de substitution raisonnable, étant donné que l'eau du sol provient de l'eau de pluie (avec une contribution de la fonte des neiges au printemps). L'eau du sol modélisée a été calculée comme indiqué à la Section 4.1.1 (Équation 4.1) avec une humidité absolue de 0,0089 L/m^3 pour la période exempte de neige (correspondant aux chutes de pluie échantillonnées). Les valeurs modélisées et mesurées sont comparées au Tableau 5.9 et illustrées à la Figure 5.10. Six prévisions sur huit (75 %) correspondaient à moins d'un facteur de deux des valeurs mesurées et les prévisions sont généralement supérieures ou égales aux valeurs mesurées. En moyenne, les concentrations modélisées étaient environ le double des valeurs mesurées.

[3] OPG utilise les résultats des échantillonneurs passifs pour calculer la dose reçue par le public, à titre de mesure prudente, jusqu'à ce qu'elle puisse résoudre les différences entre les deux méthodes de mesure.

Davis (2006) a étudié les concentrations de tritium dans l'air, dans l'eau de pluie et dans l'eau du sol à trois des stations indiquées au Tableau 5.8 (P2, DF8 et F27). Il estime qu'il y a une bonne concordance entre les concentrations de tritium dans l'eau du sol et les concentrations dans l'eau de pluie, dont la moyenne avait été établie pour les cinq mois précédents. Le rapport eau de pluie/eau du sol était en moyenne de 1,2, se situant entre 0,8 et 2. L'eau du sol modélisée à partir de l'air (Équation 4.1) était environ 50 % plus élevée que les valeurs mesurées.

Tableau 5.8 : Tritium modélisé et mesuré dans l'air à l'installation de Pickering, 2007

Lieu[1]	Concentration de HTO (Bq/m³)			Modélisé/ mesuré
	Échantillonneur actif	Échantillonneur passif	Modélisée	
P2	20,8	32,8	28,96	0,88
P3	3,9	7,8[2]	8,73	1,12
P4	1,6	3,2[2]	10,88	3,40
P6	6,8	13,7	16,68	1,22
P10	15,9	31,5	39,12	1,24
P11	3,5	7,0	9,97	1,42
C2	-	6,7	6,21	0,93
DF8	-	1,3	1,00	0,77
F31/F27	-	1,2	1,49	1,24

[1] *P2 - P11 sont des stations périmétriques.*

[2] *La valeur passive est estimée être le double de la valeur active.*

Tableau 5.9 : Tritium modélisé dans l'eau du sol comparativement au tritium mesuré dans l'eau de pluie à l'installation de Pickering, 2007

Lieu	Concentration de HTO (Bq/L)		
	Pluie	Eau du sol modélisée	Modélisée/mesurée
P2	602	976	1,62
P3	150	294	1,96
P4	91	367	4,03
P6	296	562	1,90
P10	691	1 318	1,91
P11	112	336	3,00
DF8	34	34	1,00
F31/F27	34	50	1,47

Figure 5.9 : Tritium modélisé en fonction du tritium mesuré dans l'air à l'installation de Pickering, 2007

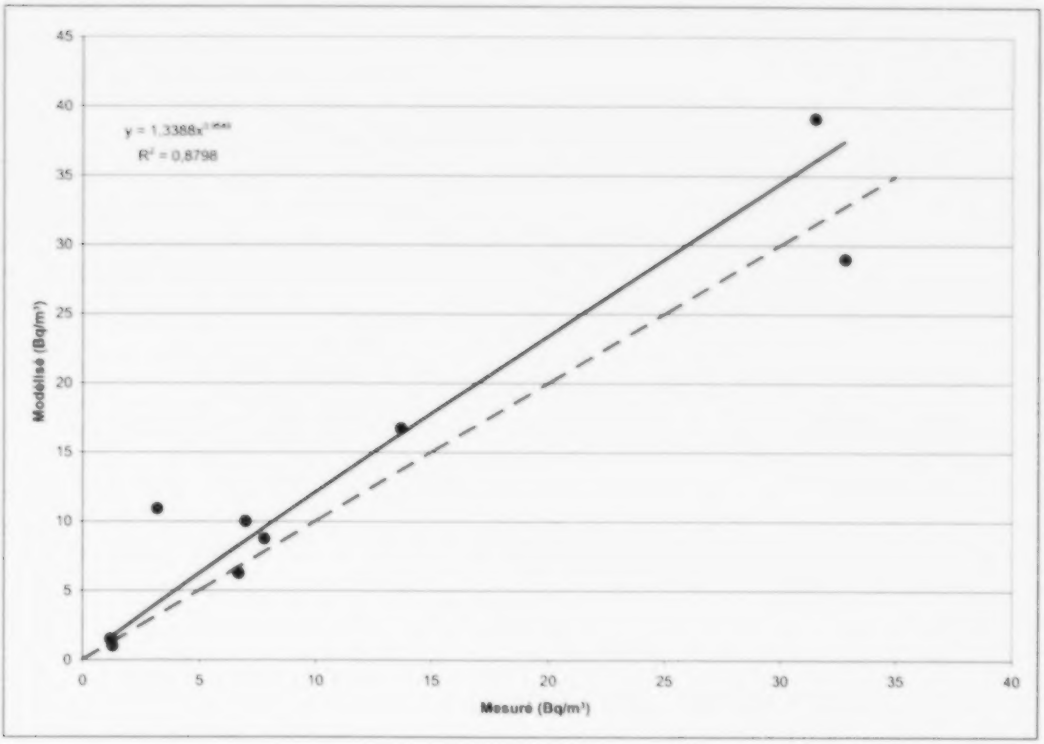
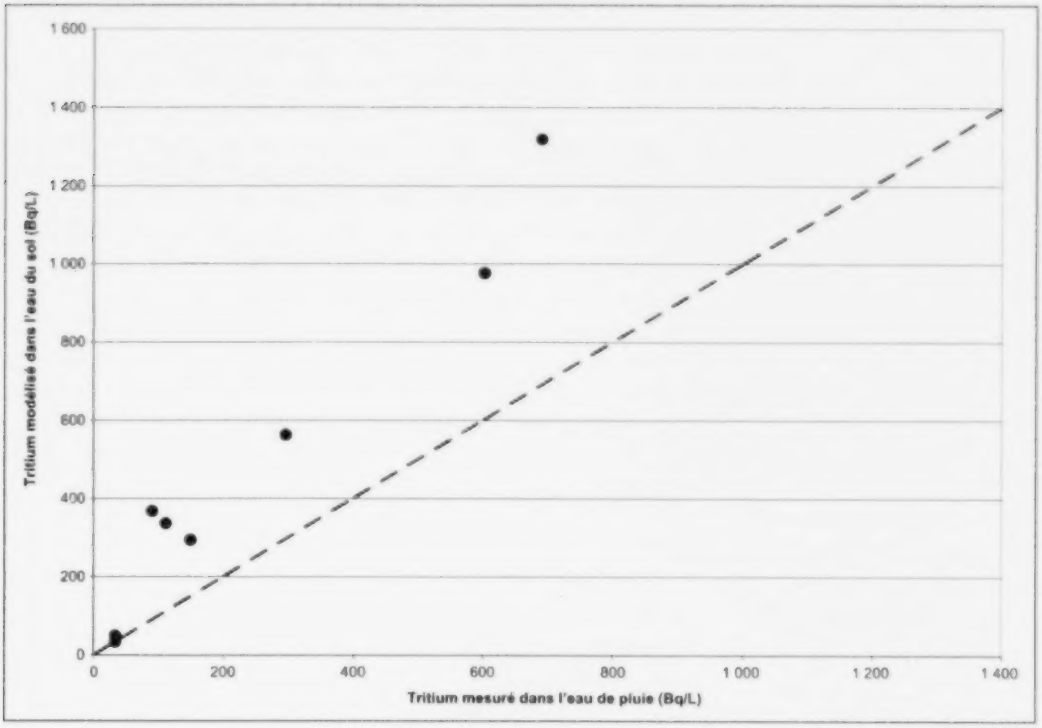


Figure 5.10 : Tritium modélisé dans l'eau du sol en fonction du tritium mesuré dans l'eau de pluie à l'installation de Pickering, 2007



5.2.2 Darlington (DN)

La modélisation de l'installation de DN a été effectuée à l'aide de l'information contenue dans le document d'OPG intitulé *Résultats 2007 du Programme de surveillance environnementale du rayonnement ambiant* (Borromeo, 2008). Le rapport présente les émissions de l'installation ainsi que les données de surveillance de l'air et des précipitations pour des sites autour de l'installation. Les stations de surveillance de l'air et des précipitations comprennent différents sites périphériques se situant dans un rayon de 2 km autour de l'installation, ainsi que des sites plus éloignés, jusqu'à 13 km de l'installation.

Des échantillonneurs actifs et passifs ont été utilisés. Les échantillons ont été recueillis tous les trimestres, et une moyenne a été établie pour obtenir une valeur moyenne annuelle. Les échantillonneurs passifs à OPG donnent généralement des résultats correspondant au double des résultats des échantillonneurs actifs[4]. Étant donné que la plupart des stations en champ

[4] OPG a utilisé les résultats des échantillonneurs passifs pour calculer la dose reçue par le public, à titre de mesure prudente, jusqu'à ce qu'elle puisse résoudre les différences entre les deux méthodes de mesure.

éloigné ne possèdent que des échantillonneurs passifs, les estimations ont été faites à partir des résultats des échantillonneurs passifs à certains endroits périphériques, lorsqu'il n'y avait que des échantillonneurs actifs.

Les concentrations de tritium (HTO) dans l'air ont été modélisées à l'aide du programme IMPACT, qui contient un modèle de panache gaussien à moyenne de zone en régime permanent, comme décrit dans la norme CSA (2008) N288.1. Le modèle a utilisé les émissions annuelles de 2007 (160 TBq/a de HTO)[5] et des données météorologiques de 2007. À titre d'essai du modèle atmosphérique, les concentrations moyennes annuelles prévues au niveau du sol pour 2007 ont été comparées aux concentrations annuelles moyennes mesurées pour la même année dans six sites périphériques et cinq emplacements en champ éloigné.

Les concentrations de tritium modélisées et mesurées sont présentées au Tableau 5.10 et illustrées à la Figure 5.11. Les résultats indiquent que les concentrations prévues par le modèle pour le HTO dans l'air sont généralement (91 %) supérieures d'un facteur de deux de la concentration mesurée (à l'aide d'échantillonneurs passifs). En moyenne, les concentrations modélisées sont plus élevées d'environ 20 % que les valeurs mesurées.

Il convient de noter que, si des résultats d'échantillonneurs actifs sont exacts, cela signifie que le modèle atmosphérique mis en œuvre ici comporte davantage de surestimations que suggéré au Tableau 5.8, soit environ le double.

Tableau 5.10 : Tritium modélisé et tritium mesuré dans l'air sur le site de Darlington, 2007

Lieu[1]	Concentration de HTO (Bq/m³)			Modélisé/ mesuré
	Échantillonneur actif	Échantillonneur passif	Modélisée	
D1	1,8	3,7	5,02	1,36
D2	1,6	3,5[2]	3,71	1,06
D3	0,9	1,8[2]	3,04	1,69
D4	0,6	1,2	0,98	0,82
D5	0,5	1,0	0,67	0,67
D6	0,4	0,5	0,33	0,66
D7	0,2	0,4	0,72	1,80
D8	0,6	1,2	0,93	0,78
F1	-	1,1	1,53	1,39
DF5	-	0,2	0,59	2,95
R275	-	1,0	1,34	1,34

[1] *P2 à P11 sont des stations périmétriques.*

[2] *La valeur passive est estimée au double de la valeur active.*

[5] Les émissions n'ont pas été ajustées pour tenir compte du HTO produit par les rejets de HT. 130 TBq/a de HT provenant de l'installation d'extraction du tritium devraient augmenter les concentrations de HTO d'environ 2 %.

Tableau 5.11 : Tritium modélisé dans l'eau du sol comparativement au tritium mesuré dans l'eau de pluie sur le site de Darlington, 2007

Lieu	Concentration de HTO (Bq/L)		Modélisé/ mesuré
	Pluie	Tritium modélisé dans l'eau du sol	
D1	72	169	2,35
D2	68	125	1,84
D3	27	102	3,78
D4	28	33	1,18
D5	28	23	0,82
D6	20	11	0,55
D7	14	24	1,71
D8	19	31	1,63
F1	42	52	1,24
DF5	13	20	1,54
R275	38	45	1,18

Figure 5.11 : Tritium modélisé en fonction du tritium mesuré dans l'air sur le site de Darlington, 2007

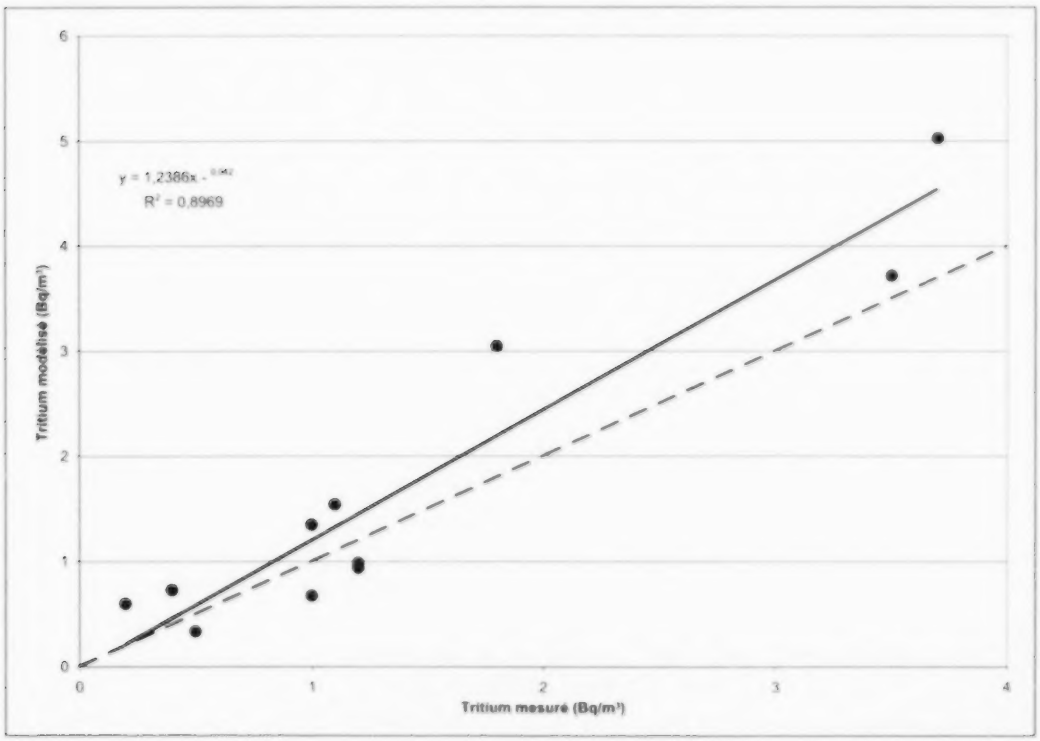
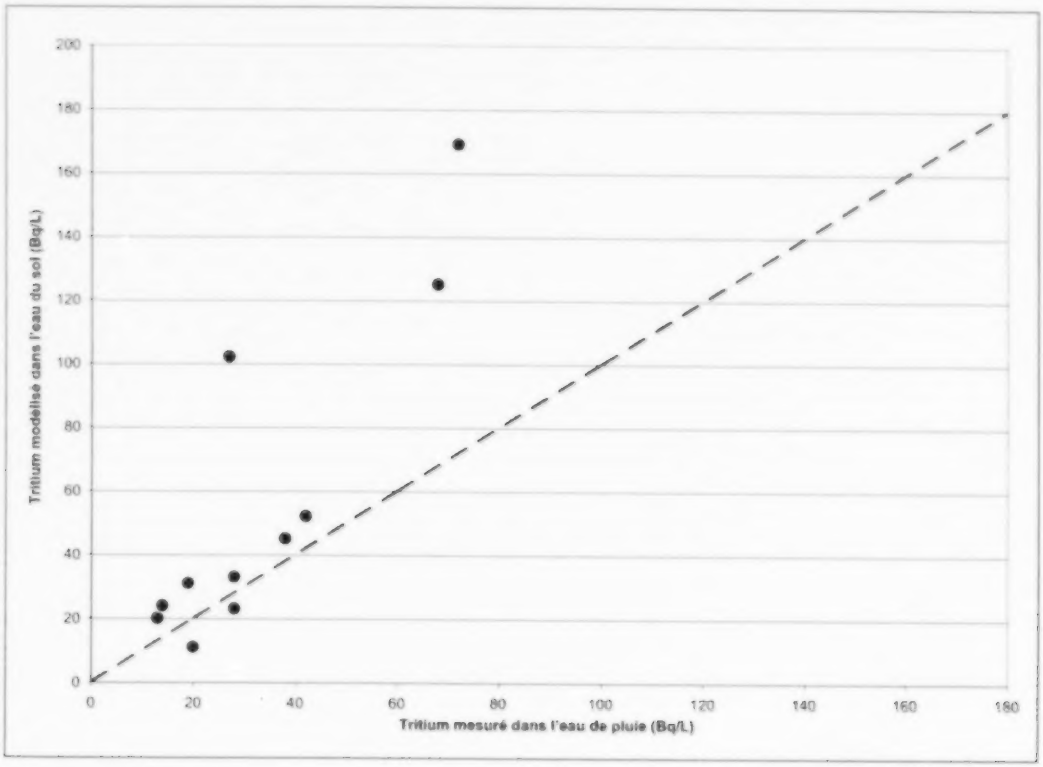


Figure 5.12 : Tritium modélisé dans l'eau du sol en fonction du tritium mesuré dans l'eau de pluie sur le site de Darlington, 2007



L'eau du sol n'est pas mesurée de manière courante aux installations d'OPG; cependant, l'eau de pluie constitue une mesure de substitution raisonnable. L'eau du sol modélisée a été calculée comme décrit à la Section 4.1.1 (Équation 4.1) à l'aide de la valeur de l'humidité absolue de 0,0089 pour la période sans neige (pour correspondre aux chutes de pluie échantillonnées). Les valeurs modélisées et mesurées sont comparées dans le Tableau 5.11 et illustrées à la Figure 5.12. Neuf des 11 prévisions (82 %) correspondent à un facteur de deux des valeurs mesurées. En moyenne, les concentrations modélisées étaient 62 % plus élevées que les valeurs mesurées.

5.2.3 Bruce (BN)

La modélisation de l'installation de BN a été effectuée à l'aide des renseignements contenus dans le Rapport annuel et évaluation des données radiologiques environnementales pour 2006 (McDougall, 2007). Le rapport présente les émissions de l'installation ainsi que les données de surveillance atmosphérique et de surveillance des précipitations pour des sites autour de l'installation. Les stations de surveillance atmosphérique comprennent différents sites périphériques se trouvant dans un rayon de 2 km de l'installation, ainsi que des sites plus éloignés jusqu'à 19 km de l'installation.

Des échantillonneurs d'air actifs et passifs sont utilisés et tous deux sont présents dans certains sites périphériques. Les données pour ces sites indiquent une concordance raisonnable, et la valeur la plus élevée des deux mesures a été utilisée. En champ lointain, seuls des échantillonneurs passifs sont utilisés.

Les concentrations de tritium dans l'air ont été modélisées à l'aide du programme IMPACT, qui contient un modèle de panache gaussien à moyenne de zone en régime permanent, comme décrit dans la norme CSA (2008) N288.1. Le modèle utilisait des émissions annuelles pour 2006 (951 TBq/a de HTO) et des données météorologiques moyennes sur cinq ans (2002 à 2006). À titre d'essai du modèle atmosphérique, les concentrations de tritium prévues au niveau du sol pour 2006 ont été comparées aux concentrations moyennes annuelles mesurées pour la même année dans 10 sites périphériques et dans neuf sites plus éloignés de l'installation.

Les concentrations modélisées en fonction des concentrations mesurées sont présentées au Tableau 5.12 et illustrées à la Figure 5.13. Les résultats indiquent que le modèle atmosphérique surestime les concentrations comparativement aux concentrations mesurées, généralement d'un facteur de deux à trois.

L'eau du sol n'est pas mesurée de manière courante par Bruce Power; cependant, l'eau de pluie constitue une mesure de substitution raisonnable. L'eau de pluie est recueillie et mesurée dans les sites périmétriques. L'eau du sol a été modélisée, comme décrit à la Section 4.1.1 (Équation 4.1). Les valeurs modélisées et mesurées sont comparées dans le Tableau 5.13 et illustrées à la Figure 5.14. Les résultats indiquent que six valeurs modélisées sur neuf (67 %) correspondent à un facteur de deux des valeurs mesurées. En moyenne, les prévisions du modèle sont 57 % plus élevées que les mesures.

Tableau 5.12 : Tritium modélisé et mesuré dans l'air sur le site de Bruce, 2006

Lieu	Concentration de HTO (Bq/m³)			Modélisé/mesuré
	A/P[1]	Mesurée[2]	Modélisée	
B2	A	2,21	7,17	3,25
B3	A	2,03	4,27	2,10
B4	A	2,09	4,13	1,98
B5	P	1,48	4,93	3,33
B6	A	0,14	0,29	2,11
B7	A	1,0	3,08	3,08
B8	A	0,21	0,39	1,85
B9	A	0,3	0,43	1,44
B10	A	1,36	3,89	2,86
B11	A	0,54	1,19	2,20
BR1	P	1,74	6,32	3,63
BR11	P	2,58	6,26	2,43
BR25	P	1,1	3,40	3,09
BR27	P	1,66	3,29	1,98
BR39	P	0,99	2,41	2,43
BF1	P	0,68	1,97	2,90
BF14	P	1,23	3,75	3,05
BDF11	P	0,25	0,65	2,58
BM6	P	0,41	0,76	1,86

[1] *A=échantillonneur actif, P=échantillonneur passif, la valeur la plus élevée a été utilisée*

[2] *Les valeurs mesurées ont été corrigées pour tenir compte du rayonnement de fond, sauf pour B6.*

Tableau 5.13 : Tritium modélisé dans l'eau du sol comparativement au tritium mesuré dans l'eau de pluie sur le site de Bruce, 2006

Lieu	Concentration de HTO (Bq/L)		Modélisé/mesuré
	Pluie	Eau du sol modélisée	
B2	156	326,12	2,09
B4	146,5	187,86	1,28
B5	122,4	224,21	1,83
B6	6,5	13,41	2,06
B7	70,2	140,04	1,99
B8	21,5	17,61	0,82
B9	22,6	19,70	0,87
B10	69,3	176,84	2,55
B11	91,7	54,10	0,59

Figure 5.13 : Tritium modélisé en fonction du tritium mesuré dans l'air sur le site de Bruce, 2006

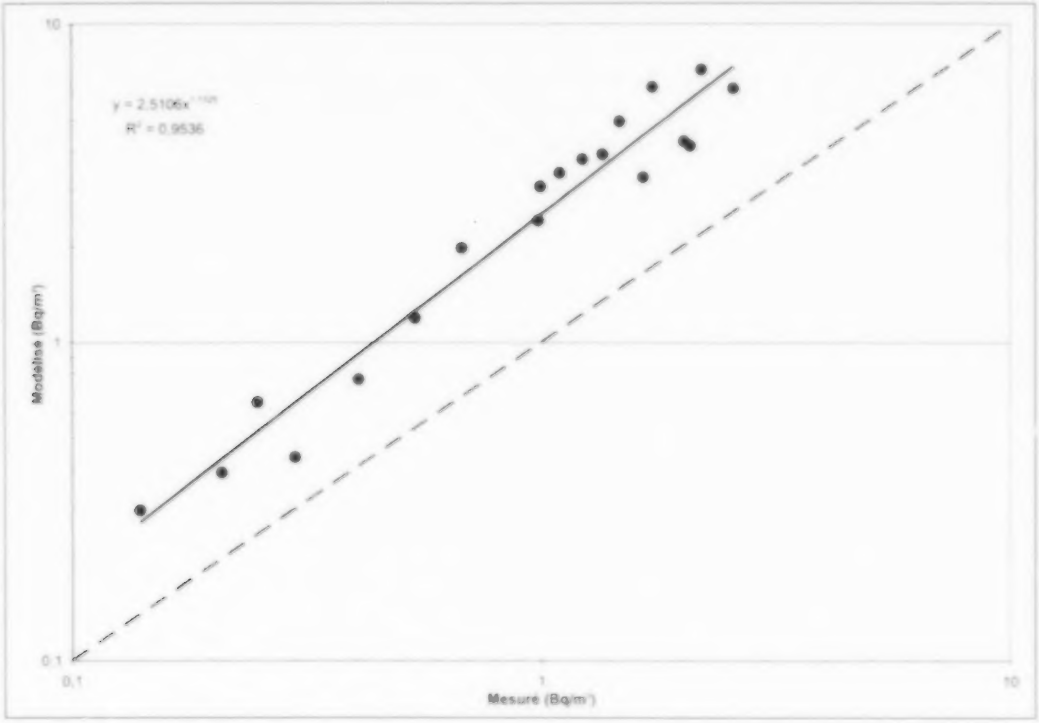
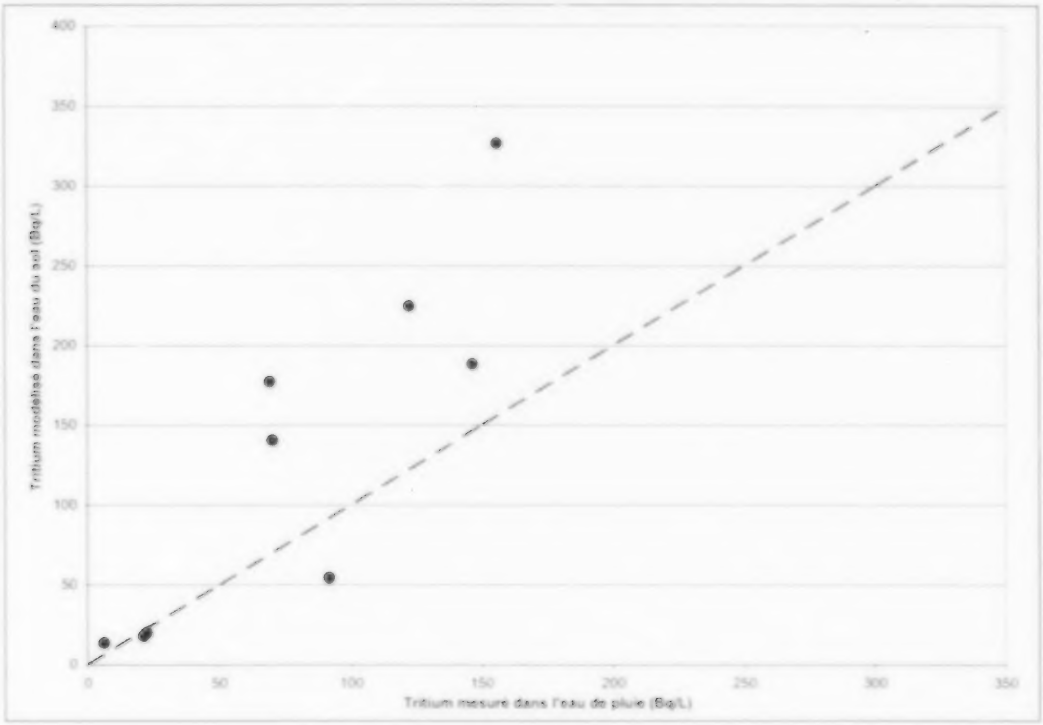


Figure 5.14 : Tritium modélisé dans l'eau du sol en fonction du tritium mesuré dans l'eau de pluie sur le site de Bruce, 2006



5.3 Examen du rendement des modèles

Les exemples suivants sont examinés afin de tirer des conclusions générales concernant notre capacité de prévoir le devenir environnemental du tritium à l'aide de modèles simples de la dispersion atmosphérique et de la répartition du tritium dans l'eau. Les modèles et les paramètres qui sont utilisés sont prudents afin de s'assurer que l'exposition environnementale au tritium n'est pas sous-estimée systématiquement.

5.3.1 Air

Les prévisions du tritium atmosphérique par le modèle ont été comparées aux mesures effectuées à cinq installations dont on sait qu'elles rejettent du tritium dans l'atmosphère. À ces installations, la majorité des prévisions correspondaient au double des valeurs mesurées et étaient légèrement supérieures aux valeurs mesurées en moyenne (20 % à 83 %). Dans deux installations, les concentrations de tritium dans l'air ont fait l'objet d'une surprévision plus importante (d'un facteur de deux ou de trois en moyenne). Dans un cas, les surestimations étaient particulièrement évidentes en champ proche et pourraient découler du fait que l'élévation du panache thermique n'a pas été représentée. Dans l'autre cas, les données météorologiques étaient sur une période de cinq ans, plutôt que d'un an, au lieu de se rapporter à l'année de surveillance spécifique.

De façon générale, le modèle gaussien des concentrations dans l'air en régime permanent se comporte comme prévu, produisant généralement des surestimations de la concentration atmosphérique, et ce, davantage à certaines installations qu'à d'autres.

5.3.2 Eau du sol

Les prévisions du tritium dans l'eau du sol ont été comparées aux mesures effectuées dans l'eau du sol à une installation, et à des mesures de l'eau de pluie à trois autres installations. L'eau du sol de surface devrait être semblable à l'eau de pluie, étant donné qu'elles proviennent toutes deux de l'eau de pluie, avec la contribution de la fonte des neiges au printemps. Toutefois, les couches de terrain plus profondes représentent les chutes de pluie plus anciennes, qui deviennent importantes lorsque le tritium dans l'air augmente ou diminue fortement.

Les mesures effectuées dans l'eau du sol à une installation où les rejets de tritium avaient diminué fortement concordaient bien avec les prévisions de l'eau du sol basées sur les concentrations atmosphériques de l'année précédente. La majorité de ces prévisions ne dépassaient pas le double des valeurs mesurées et étaient en moyenne plus élevées de 35 %.

Les comparaisons de l'eau du sol modélisée avec l'eau de pluie mesurée à trois installations ayant connu des rejets relativement stables montraient que la majorité des prévisions pour l'eau du sol correspondaient au double des valeurs mesurées dans l'eau de pluie. Les prévisions étaient environ 60 % plus élevées à deux installations et à peu près le double à l'autre installation.

De façon générale, les prévisions dans l'eau du sol, comme les prévisions atmosphériques sur lesquelles elles sont basées, sont généralement le double des valeurs mesurées et ont tendance à être plus élevées que les valeurs mesurées en moyenne.

5.3.3 Eau des étangs

Les prévisions du modèle pour l'eau des étangs ont été comparées aux valeurs mesurées dans l'eau des étangs à une installation. La majorité des prévisions du modèle correspondaient à un facteur de deux ou trois des concentrations mesurées. Les prévisions du modèle étaient en moyenne 28 % plus élevées que les valeurs mesurées.

Les étangs et les marais sont potentiellement influencés par l'arrivée d'eau provenant de l'amont, ce qui peut causer une dilution ou transporter des charges de tritium, reflétant ainsi les arrivées d'eau antérieures dans le bassin versant. Le modèle simple utilisé ici suppose que les écoulements dans l'étang sont suffisamment faibles pour que l'air et l'eau de l'étang s'équilibrent. De façon générale, les écarts par rapport aux prévisions du modèle simple peuvent être expliqués par l'hydrologie en amont.

5.3.4 Eaux souterraines

Les prévisions du modèle pour les eaux souterraines en profondeur ont été comparées aux mesures des eaux souterraines effectuées à une installation. La majorité des prévisions du modèle correspondaient à un facteur de trois des concentrations mesurées. Parmi les prévisions à l'extérieur de cette plage, une valeur était faible comparativement aux mesures, probablement à cause de l'influence localisée de la fonte des neiges accumulée dans cette zone. D'autres prévisions étaient élevées comparativement aux mesures, probablement à cause de l'écoulement horizontal des eaux souterraines le long de la surface du socle rocheux.

De façon générale, les eaux souterraines sont complexes comparativement au modèle simple de transport vertical dans l'aquifère. L'écoulement horizontal, ainsi que les variations locales dans le sol de sous-sol, la conductivité hydraulique et le taux d'infiltration peuvent donner lieu à des écarts par rapport aux prévisions du modèle simple.

6.0 CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

6.1 Conclusions générales

Cet examen a présenté nos connaissances sur le comportement du tritium et sur son devenir environnemental dans l'atmosphère et le milieu hydrologique. Des résultats spécifiques sur le sujet sont détaillés dans les sections précédentes du rapport. Voici certaines conclusions générales.

- Le comportement du tritium dans l'atmosphère et dans l'eau est raisonnablement bien compris. Cela comprend la dispersion dans l'air et dans l'eau, la répartition du tritium atmosphérique dans l'eau du sol et dans l'eau de surface et son transfert de l'eau du sol vers les eaux souterraines.
- Les modèles atmosphériques gaussiens moyens à long terme sont quelque peu prudents (surestimation) et conviennent à l'estimation de la dose annuelle reçue par les personnes. Pour la modélisation des événements à court terme ou des rejets dans des terrains complexes, des modèles plus complexes sont disponibles.
- Il existe des incertitudes liées aux mesures en ce qui concerne les écarts entre les résultats des échantillonneurs actifs et des échantillonneurs passifs. Dans certaines installations, les résultats des échantillonneurs passifs ont tendance à être presque deux fois plus élevés.
- Les concentrations atmosphériques se déposent dans l'eau du sol et dans les eaux souterraines sous le panache atmosphérique à long terme, en supposant qu'il n'y a aucun rejet en amont dans les eaux souterraines.
- Le décalage peut être important entre l'eau du sol et l'eau souterraine étant donné que ces milieux prennent des mois ou des années à s'équilibrer par rapport au panache atmosphérique. Le décalage dans la réponse de ces milieux est particulièrement évident lorsqu'il y a une tendance à long terme dans les concentrations atmosphériques. Le décalage dépend de la texture du substrat et des temps de trajet verticaux.
- L'écoulement des eaux souterraines provenant de l'amont, ainsi que la répartition du tritium dans l'air au-dessus d'un puits peuvent avoir des incidences importantes sur les concentrations de tritium dans l'eau des puits.

6.2 Recommandations

Les recommandations suivantes portent essentiellement sur la résolution des incertitudes qui pourraient avoir une incidence sur les estimations de la dose et les évaluations de la sûreté dans certains cas.

- Résoudre les écarts qui sont souvent observés entre les résultats des échantillonneurs actifs et des échantillonneurs passifs de l'air, réduisant ainsi les incertitudes dans les valeurs mesurées.
- Réaliser des études en champ proche de l'air, de l'eau du sol et des eaux souterraines afin de mieux comprendre les décalages entre l'eau du sol et les eaux souterraines, ainsi que l'importance des effets en amont.

7.0 RÉFÉRENCES

Abrol, V. 1990. *Estimation of washout of tritiated water (HTO) effluent by raindrops.* Bull. Rad. Prot. 13:23-66.

Agence internationale de l'énergie atomique (AIEA). 2003. *Reference Biospheres for Solid Radioactive Waste Disposal: Report of BIOMASS Theme 1 of the BIOsphere Modelling and ASSessment (BIOMASS) Programme.* IAEA-BIOMASS-6. Vienne.

AIEA/OMM (Agence internationale de l'énergie atomique/Organisation météorologique mondiale). 2004a. *Management of waste containing tritium and carbon-14.* Rapports techniques de l'AIEA, série nº 421.

AIEA/OMM (Agence internationale de l'énergie atomique/Organisation météorologique mondiale). 2004b. *Global network of isotopes in precipitation.* Base de données du GNIP. Disponible sur : http://www-naweb.iaea.org/napc/ih/GNIP/IHS_GNIP.html.

Albenesius, E. L. 1959. *Tritium as a Product of Fission*, Phys. Rev. Lett., 3(6): 274-275.

Albenesius, E. L., et R. S. Ondrejcin. 1960. *Nuclear Fission Produces Tritium*, Nucleonics, 18(9): 100.

ANL (Argonne National Laboratory). 2005. *Tritium (hydrogen-3).* EVS Human Health Fact Sheet.

ATSDR (Agency for Toxic Substances and Disease Registry). 2002. *Health consultation: Tritium releases and potential offsite exposures.* Federal Facilities Assessment Branch, Division of Health Assessment and Consultation, Agency for Toxic Substances and Disease Registry. http://www.atsdr.cdc.gov/hac/pha/livermore2/liv_toc.html.

Audi, G., et A.H. Wapstra. 1995. *The 1995 update to the atomic mass evaluation.* Nuclear Physics A, 595(4): 409-480.

Auld, H., J. Klaassen, S. Fernandez, G. Fenton, S. Eng, N. Comer et T. Ralph. (sans date). *The changing climate and NBCC climatic design values.* Report for the Canadian Commission on Building and Fire Codes. Climatic Loads Task Force.

Baran, N., J. Richert et C. Mouvet. 1997. *Field data and modeling of water and nitrate movement through deep unsaturated loess.* Journal of Hydrology 345: 27-37.

Barrett, E.W., et L. Huebner. 1960. *Atmospheric Tritium Analysis.* Technical Progress Report No. 2, USAEC Report AECU-4739, University of Chicago.

Barrett, E.W., et L. Huebner. 1961. *Atmospheric Tritium Analysis.* Technical Progress Report No. 3, USAEC Report TID-14425, University of Chicago.

Barry, P.J. 1964. *Some recent experiments on transfer of radioactive tracers from air to natural surfaces.* Rapport EACL, EACL-2045, Chalk River, Ontario.

Baver, L. D. 1956. *Soil Physics*, John Wiley & Sons, Inc., New York.

Begemann, F. 1958. *New Measurements on the World-Wide Distribution of Natural and Artificially Produced Tritium, in Proceedings of the Second United Nations.* International Conference on Peaceful Atom of Atomic Energy, Genève. 18: 545-550.

Begemann, F. 1962. *The Natural Tritium Economy of the Earth and the Question of Its Variation with Time*, Chimia, 16(1): 1-10.

Begemann, F. 1963. « The Tritium Content of Atmospheric Hydrogen and Atmospheric Methane ». Dans : *Earth Science and Meteoritics*, North Holland Publishing Co., Amsterdam. P. 169-187.

Begemann, F., et W. F. Libby. 1957. *Continental Water Balance, Ground Water Inventory and Storage Times, Surface Ocean Mixing Rates and Worldwide Water Circulation Patterns from Cosmic Ray and Bomb Tritium*, Geochim. Cosmochim. Acta, 12(4): 277-296.

Bennett, B.G. 1978. *Environmental aspects of americium.* EML-348.

Bibron, R. 1963. *Physique de l'atmosphère, évolution de la concentration du tritium dans les eaux de précipitation en France*, compte rendu, 256: 4951-4954.

Bibron, R. 1965. *Détection du tritium atmosphérique par scintillation, évolution de sa concentration en France*, rapport français CEA-R-2629.

Bigeleisen, J., 1962. « Correlation of Tritium and Deuterium Isotope Effects ». Dans : *Tritium in the Physical and Biological Sciences*, compte rendu du colloque, Vienne, 1961, I: 161-168, Agence internationale de l'énergie atomique, Vienne, 1962 (STI/PUB/39).

Bieringer, J., et C. Schlosser. 2004. *Monitoring ground-level air for trace analysis: methods and results*. Anal. Bioanal. Chem., 379: 234-241.

Bishop, K.F., H. I. Delafield, A. E. J. Eggleton, C. O. Peabody et B. T. Taylor. 1962. « The Tritium Content of Atmospheric Methane ». Dans: *Tritium in the Physical and Biological Sciences*, Compte rendu du colloque, Vienne, 1961, I: 55-67, Agence internationale de l'énergie atomique, Vienne, (STI/PUB/39).

Blomeke, J.O. 1964. *Management of Fission Product Tritium in Fuel Processing Wastes*, USAEC Report ORNL-TM-851, Oak Ridge National Laboratory.

Bogen, D.C., G.A. Welford et C.G. White. 1979. « Tritium distribution in man and his environment ». Dans : *Behaviour of Tritium in the Environment*. AIEA, Vienne, p. 567-574.

Bolin, B. 1958. « On the Use of Tritium as a Tracer for Water in Nature ». Dans : *Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy*. Genève, 1958, 18: 336-343, Nations Unies, New York.

Bolin, E. 1961. *An Investigation of Tritium in Atmospheric Moisture, Rainwater and the Sea in the European Area*, IJSAEC Report TID-13376.

Bolin, B. 1964. *Research in Geophysics*, 2: 479-508. The M.I.T. Press: Cambridge, Mass.

Born, M., H. Dörr et I. Levin. 1990. *Methane consumption in aerated soils of the temperate zone*. Tellus, 42:2-8.

Borromeo, J. 2007. 2006 *Results of Radiological Environmental Monitoring Programs*. N-REP-03481-10005-R00.

Borromeo. J. 2008. 2007 *Results of Radiological Environmental Monitoring Programs*.

N-REP.03481-1006-R00. Ontario Power Generation.

Bowen, V.T., et W. Roether. 1973. *Vertical distributions of strontium-90, caesium-137 and tritium near 45° north in the Atlantic*. J. Geophys. Res., 78: 6277-6285.

Brown, R. M., et W. E. Grummitt. 1956. *The Determination of Tritium in Natural Waters*, Journal canadien de chimie, 34: 220-226.

Briggs, G.A. 1971. *Plume rise: A recent critical review*. Nuclear Safety 12, 15-24.

Brown, R. M. 1964. « Tritium in precipitation at Canadian sites », 1953-1963. Dans : *Tritium and Other Environmental Isotopes in the Hydrological Cycle*, Technical Report Series, TRS No. 73, Agence internationale de l'énergie atomique, Vienne (STI/DOC/10/73).

Brown, R. M., G. L. Ogram et F. S. Spencer. 1988. *Field studies of HT behaviour in the environment. 1: Dispersion and oxidation in the atmosphere*. Fusion Technol., 14: 1165-1169.

Brown, T. 2005. *Annual Summary and Assessment of Radiological Data for 2004*. B-REP-03419-00003 R00. Bruce Power.

Bunnenberg, C., J. Feinhals et B. Wiener. (1986). *Differences in the Behaviour of HTO and H_2O in Soil after Condensation from the Atmosphere and Conversion of HT to HTO and OBT in Soil Relative to Moisture Content and Pore Volume*. Rad. Protect. Dosim. 16 No. 1-2: 83-87.

Bunnenberg, C., M. Taschner, et G.L. Ogram. 1992. *Key processes and input parameters for environmental tritium models*. Rapport du Programme technique canadien des combustibles de fusion PTCCF G-9032/NET-88-176, Toronto, Ontario.

Burger, L.L. 1979. « Distribution and reactions of tritiated hydrogen and methane ». Dans : Behaviour of Tritium in the Environment. AIEA, Vienne. p. 47-64.

Butler, H.L. 1963. *Tritium Hazards in Heavy-Water-Moderated Reactors*, Nucl. Safety, 4(3): 77-82.

Casaletto, G.J., L.H. Gevantman, et J.B. Nash. 1962. *The Self-Radiation Oxidation of Tritium in Oxygen and Air*. Report USNRDLTR-565, Naval Radiological Defense Laboratory.

Chamberlain, A. C., et A. E. J. Eggleton. 1964. *Washout of Tritiated Water Vapour by Rain*. Int J. Air Water Pollut., 8: 135-149.

Chouhan, S.L., et P. A. Davis (2001). *Testing the Atmospheric Dispersion Model of CSA N288.1 with Site-Specific Data*. EACL-12099. Énergie atomique du Canada limitée.

CCSN. 2003. *Données sur les rejets radioactifs des centrales nucléaires canadiennes de 1993 à 2002*. INFO-210 (Révision 11). Commission canadienne de sûreté nucléaire.

Comps, F., et R.J. Doda. 1979. « Large-scale distribution of tritium in a commercial production ». Dans : *Behaviour of Tritium in the Environment*. AIEA, Vienne, p. 93-99.

Coyle, P.E. 1979. « Laser fusion. Status, future and tritium control ». Dans : *Behaviour of Tritium in the Environment*. AIEA, Vienne. p. 139-153.

Craig, H. 1957. *Distribution, Production Rate, and Possible Solar Origin of Natural Tritium*. Phys. Rev., 105: 1125-1127.

Craig, H., et D. Lal. 1961. *The Production Rate of Natural Tritium*. Tellus, 13: 85-105.

Crawford-Brown, D.J. 1984. *An age-dependent model of tritium metabolism following mixed (organic/inorganic) intakes*. Health Phys., 46: 924-8.

Crowson, D.L. 1973. « Man-made tritium ». Dans : *Tritium* (A.A. Moghissi et M.W. Carter, éd.). Messenger Graphics, Las Vegas, Nevada p. 23-27.

Crutzen, P.J. 1991. *Methane's sinks and sources*. Nature 350:380-381.

CSA (2008). *Guidelines for calculating derived release limits for radioactive material in airborne and liquid effluents for normal operation of nuclear facilities*. Association canadienne de normalisation N288.1-08.

Currie, L. A. 1959. *Tritium Production by 6-Bev Protons*. Phys. Rev., 11413: 878-880.

Currie L. A., W. F. Libby, et R. L. Wolfgang. 1956. *Tritium Production by High-Energy Protons*, Phys. Rev., 101(5): 1557-1563.

Davis, P.A., 1997. *Tritium transfer parameters for the winter environment*. J. Environ. Rad., 36(2-3): 177-196.

Davis, P.A., et G.A. Bickel. 2000. *Transfer parameters for environmental pathways models for chronic emissions of tritiated hydrogen gas*. Énergie atomique du Canada limitée (EACL), RC-2501.

Davis, P.A., W.J.G. Workman, B.D. Amiro, F.S. Spencer, H. Noguchi, H. Amano, Y. Ichimasa et M. Ichimasa. 1995a. *Overview of the 1994 chronic HT release experiment at Chalk River*. Fusion Technology, 28: 840-845.

Davis, P.A., D.C. Galeriu, F.S. Spencer et B.D. Amiro. 1995b. *Evolution of HTO concentrations in soil, vegetation and air during an experimental chronic HT release*. Fusion Technology, 28: 833-839.

Davis, P.A., D.C. Galeriu, F. S. Spencer et B.D. Amiro. 1997. *Evolution of HTO concentrations in soil, vegetation and air during an experimental chronic HT release*. Fusion Technol. 28: 833-839.

Davis, P.A. 1995. *Tritium transfer parameters for the winter environment*. J. Environ. Radioactivity 36: 177-196.

Davis, P.A. 2006. *Results of the EMRAS Pickering Scenario*. Rapport technique du Groupe des propriétaires de CANDU. COG-05-3070.

Davis, P.A., T.G. Kotzer et W.J.G. Workman. 2002. *Environmental tritium concentrations due to continuous atmospheric sources*. Fusion Science and Technology 41: 453.

DeWaele, C. 2006. *Radiological Environmental Monitoring in 2005 at Chalk River Laboratories*. Rapport annuel de programme, CRL-50924-ASR-2005 (EACL-MISC-362-05-CRL, vol. 3) Rev 0. Énergie atomique du Canada limitée, Chalk River, Ontario.

Dorfman, L. M. et A. Hemmer. 1954. *Ion Pair Yield of the Tritium -Oxygen Reaction*. J. Chem Phys., 22: 1555-1558.

Dunstall, T.G., G.L. Ogram et F.S. Spencer. 1985a. *Elemental tritium deposition and conversion in the terrestrial environment*. Programme technique canadien des combustibles de fusion, rapport CFFTP-G-85035.

Dunstall, T.G., G.L. Ogram et F.S. Spencer. 1985b. *Elemental tritium deposition and conversion in the terrestrial environment*. Fusion Technol., 8: 2551-2556.

EcoMetrix. 2008. Comprehensive Report – *Groundwater Studies at the SRB Technologies Facility, Pembroke (ON)*.

Ehhalt, D.H. 1971. *Vertical profiles and transport of HTO in the troposphere*. J. Geophys. Res., 76(30): 7351-7367.

Ehhalt, D.H. 1974. *The atmospheric cycle of methane*. Tellus, 26: 58-70.

Ehhalt, D.H., F. Rohrer, S. Schauffler et W. Pollock. 2002. *Tritiated water vapor in the stratosphere: Vertical profiles and residence time*. Journal of Geophysical Research, 107(D24): 4757.

Ehhalt, D.H., F. Rohrer et A. Fried. 2005. *Vertical profiles of HDO/H_2O in the troposphere*. Journal of Geophysical Research, 110: D13301

.

Eisenbud, M. et T.F. Gesell. 1997. Environmental Radioactivity from Natural, Industrial, and Military Sources, 4e édition. Academic Press: San Diego, CA.

Engelke, M.J. et E.A. Hemis, Jr. 1962. *A Study of the Diffusion and Mixing of Tritium Gas in Air*. USAEC Report LA-2671, Los Alamos Scientific Laboratory.

Environnement Canada. 1983. *Sommaire chronologique de l'écoulement : Ontario*, Direction générale des eaux intérieures, Direction des ressources hydrauliques, Division des relevés hydrologiques du Canada, Ottawa.

Environnement Canada. 1998. *Phénomènes météorologiques extrêmes et changement climatique*. Rapport par D. Francis (Lanark House Communications) et H. Hengeveld (Service de l'environnement atmosphérique). Ministre des Approvisionnements et Services Canada.

Eriksson, E. 1965. *An account of the major pulses of tritium and their effects in the atmosphere*. Tellus, 17: 118-130.

Estournel, R. 1962. *Présence de tritium dans les Circuits de refroidissement des réacteurs G2 et G3*. Rapport français CEA-2205.

Faltings, V. et P. Harteck. 1950. *Der tritiumgehalt der atmosphäre z. naturforschg*. 5 a: 438-439.

Fireman, E.L. 1953. *Measurement of the (n,H^3) cross section in nitrogen and its relationship to the tritium produced in the atmosphere*. Phys. Rev., 91: 922-926.

Fireman, E. L., et F. S. Rowland. 1961. *An additional measurement of the tritium content of atmospheric hydrogen of 1949*. J. Geophys. Res., 66(12): 4321.

Flamm, E., R. E. Lingenfelter, J. F MacDonald, et W. F.Libby. 1962. *Tritium and helium-3 in solar flares and loss of helium from the earth's atmosphere*. Science, 138(3536): 48-49.

Freyer, H.D., 1977. « Atmospheric cycles of trace gases containing carbon ». Dans : *SCOPE 13 - The Global Carbon Cycle*. Workshop on the Carbon Cycle, Ratzeburg, République fédérale d'Allemagne, du 21 au 26 mars 1977.

Friedlander, G., J.W. Kennedy, E.S. Macias et J.M. Miller. 1981. *Nuclear and Radiochemistry*, 3e édition. Wiley Publishing: New York.

Freeze, R.A., et J.A. Cherry. 1979. *Groundwater*. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey. 604 p.

Gat, J.R., U. Karfunkel, et A. Nir. 1962. « Tritium content of rainwater from the eastern Mediterranean Area ». Dans : *Tritium in the Physical and Biological Sciences, Symposium Proceedings*. Vienne. Vol. 1, p. 41-54, Agence internationale de l'énergie atomique, Vienne, 1962 (STI/PUB/39).

Galeriu, D., R. Heling et A. Melintescu. 2005. *The dynamics of tritium including OBT in the aquatic food chain*. Fusion Sci. Technol., 48(1): 779-82.

Galeriu , D., P. Davis, W. Raskob, et A. Melintescu. 2007. *Tritium Radioecology and Dosimetry – Today and Tomorrow*. 8th International Conference on Tritium Science and Technology. Du 16 au 21 septembre 2007, Rochester, New York.

General Nuclear Engineering Corp. 1959. *A Study of Reactor Systems for the Production of Tritium and Radioactive Cobalt*, USAEC, rapport GNEC-98.

Grosse, A.V., A.D. Kirshenbaum, J.L. Kulp, et W.S. Broecker. 1954. *The natural tritium content of atmospheric hydrogen*, Phys. Rev., 93: 250.

Grosse, A.V., W.M. Johnston, R.L. Wolfgang et W.F. Libby. 1951. *Tritium in nature*. Science, 113: 1-2.

Gratwohl, G. 1973. *Erzeugung und Freisetzung von Tritium durch Reaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000*. Kernforschungszentrum Karlsruhe, rapport KFF-Ext. 4/73-36.

Gulden, W., W. Raskob et O. Edlund. 1990. *Doses to the public due to accidental tritium releases*. Fusion Technology 17: 223-227.

Gulden, W., et W. Raskob. 1992. *Accidental tritium doses based on realistic modeling*. Fusion Technology, 21: 536-543.

Häfele, W., J.P. Holdren, G. Kessler et G.L. Kulcinski. 1977. *Fusion and fast breeder reactors*. IIASA RR-77-8.

Hagemann F., J. Gray Jr., L. Machta, et A. Turkevich. 1959. *Stratospheric carbon-14, carbon dioxide, and tritium*. Science, 130: 542-552.

Haney, W.A. 1964. Fission-product tritium in fuel-processing waste. Nucl. Safety, 4: 399-402.

Haney, W.A., D.J. Brown, et A.E. Keisenauer. 1962. *Fission Product Tritium in Separations Wastes and in the Ground Water*, USAEC, rapport IN-74536, Hanford Atomic Products Operation.

Hart, D. 2008. *Derived release limits guidance*. Rapport technique du Groupe des propriétaires de CANDU, COG-06-3090.

Harteck, P. 1954. *The relative abundance of HT and HTO in the atmosphere*. J. Chem Phys., 22: 1746-1751.

Harteck, P., et V.F. Faltings. 1950. *The helium-3 problem of the atmosphere*. Nature, 166: 1109.

Hauglustaine, D.A., et D.H. Ehhalt. 2002. *A three-dimensional model of molecular hydrogen in the troposphere*. J. Geophys. Res., 107(D17): 4330.

Holmquist, C.E. 1965. *Hazards of Tritium Oxides induced in large heavy Water Reactor Stations*. Proceedings of the American Industrial Hygiene Conference, Houston, Texas. (CONF-650540-6).

Horrocks, D.L. 1964. *Tritium produced during spontaneous fission of californium-252*. Phys. Rev., 134: B1219.

Huber, A.H. 1984. *Evaluation of a Method for Estimating Pollution Concentrations Downwind of Influencing Buildings*. Atmospheric Environment 18: 2313-2338.

ICRU (International Commission on Radiological Units and Measurements), 1963. National Bureau of Standards, Handbook 86, p. viii, Superintendent of Documents, U. S. Government Printing Office, Washington.

International Lake Environment Committee (ILEC). 1999. Bases de données de World Lakes. Lake Ontario. www.ilec.or.jp/database/nam/nam-07.html.

GIEC, (2007). *Changements climatiques 2007 : rapport de synthèse*. Un rapport du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat.

Israel, G., W. Roether et G. Schumann, 1963. *Seasonal variations of bomb-produced tritium in rain*, J. Geophys. Res., 68: 3771-3773.

Jackson, R.F. 1964. *Experience of Operation and Use of the UK High-Flux Research Reactors, in Proceedings of the Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy*. Genève, 7: 168-175, Nations Unies, New York.

Jacobs, D.G. 1968. *Sources of Tritium and its Behaviour upon Release to the Environment*. AEC Critical Review Series. TID-24635.

Jensen, M.R., J.F. Sykes, K.K. Tsui et P.D. Sevens-Guille. 1995. BNPD RWO Site 2; *Numerical Groundwater Flow System Analysis*. Nuclear Waste and Environmental Services Division, Ontario Hydro Report No. NK37-03480-94012 (VFMED) R01.

Johnson, E. F. 1962. *Thermonuclear power reactors*. Chem. Eng. Prop., 58: 60-61.

Jones, W.M. 1948. *Thermodynamic functions for tritium and tritium hydride. The equilibrium of tritium and hydrogen with tritium hydride. The dissociation of tritium and tritium hydride*. J. Chem. Phys., 16: 1077-1081.

Jones, G.C. 2007. *PWR tritium issues*. 8th International Conference on Tritium Science and Technology. Du 16 au 21 septembre 2007. Rochester, New York.

Kahn, B., R.L. Blanchard, W.L. Brinck, H.L. Krieger et H.E. Kolde. 1974. *Radiological surveillance study at the Haddam Neck PWR nuclear power station*. EPA-520/374-007, Washington.

Kalinowski, Martin B., et L.C. Colschen. 1995. *International control of tritium to prevent horizontal proliferation and to foster nuclear disarmament*. Science and Global Security. 5: 131-203.

Kaufman, S., et W. F. Libby. 1954. *The natural distribution of tritium*. Phys. Rev., 93: 1337-1344.

Kelley, J.H., et D. R. Tilley. 1987. *TUNL nuclear data evaluation project*. Nuclear Physics A474, 1.

Kim, S.B., *et coll.*, 2004. *Fate of Radioactive Methane Released from CANDU Reactors*. COG-02-3028. Février.

Kinsey, R.R. 1999. *The NUDAT/PCNUDAT Program for Nuclear Data*, Proceedings of the 9th International Symposium of Capture-Gamma Ray Spectroscopy and Related Topics, Budapest, Hongrie. Données extraites de la base de données NUDAT, le 14 janvier 1999.

Klukas, M.H. 1999. *Tritium in the Great Lakes: Concentration-Time Model*. Énergie atomique du Canada limitée (EACL), rapport RC-2338.

Konig, L.A., K.G. Langguth, Pagliosa, G. Papadopoulos, A. Radziwill, A. Schulte et S. Strack. 1984. *Radiookologische Studien der Auswirkungen von Tritiumemissionen am Beispiel des KfK. Rapport KfK 3715*, Forschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, Allemagne.

Kouts, H., et J. Long. 1973. « Tritium production in nuclear reactors ». Dans : *Tritium*. (A.A. Moghissi et M.W. Carter, éd.). Messenger Graphics. Las Vegas, Nevada. p. 38-45.

Krejci, K. 1979. « Discussion ». Dans : *Behaviour of Tritium in the Environment*. AIEA, Vienne, p. 101.

Krejci, K., et A. Zeller, Jr. 1979. « Tritium pollution in the Swiss luminous compound industry ». Dans : *Behaviour of Tritium in the Environment*. AIEA, Vienne, p. 65-77.

Lal, D., et B. Peters. 1967. « Cosmic ray produced radioactivity on the earth ». Dans : *Encyclopaedia of Physics*, vol. XLV1/2 on Cosmic Rays (K. Sitte, éd.). Springer Verlag, New York, p. 551-612.

LaMarre, J.R., 2000. *Annual Summary and Assessment of Environmental Radiological Data for 1999*. Ontario Power Generation, rapport N-REP-03419-10000.

Lange, N.A, et G. M. Forker. 1961. *Handbook of Chemistry*, 10e éd., McGraw-Hill Book Company, Inc.: New York.

Lawrence, M.G. 2005. *The relationship between relative humidity and the dew point temperature in moist air: A simple conversion and applications*. Bull. Am. Meteorol. Soc. 86: 225-233.

Lechnick, W. 1962. *Tritium concentration in PWR using lithium-7 resin*, USAEC, rapport WAPD-PWR-TE-103, Westinghouse Electric Corporation.

Leipunsky, O.I., 1960. *Radiation hazards from clean hydrogen bomb and fission atomic bomb explosions, in fallout from nuclear weapons tests, hearings before the special.*

Libby, W. F. 1952. *Natural Tritium Assay, Routine Method for Absolute Assay of Beta Radioactivity, arid the Reactions of Negative* π *Mesons with Elementary Bromine: Final Report*, USAEC file No. NP-4654.

Libby, W.F. 1953. *Tritium in nature*. Phys. Rev., 91: 442.

Libby, W.F. 1958. *Radioactive fallout*. Proc. Nut. Acad. Sci. U. S., 44: 800-820.

Libby, W.F. 1963. *Moratorium tritium geophysics*. J. Geophys. Res., 68: 4485-4494.

Lin, C.C. 1996. *Radiochemistry in nuclear power reactors*. National Academy of Sciences : Washington.

Lin, R., et K. Wei. 2005. *Tritium profiles in pore water in the Chinese loess unsaturated zone: Implications for estimation of groundwater recharge*. Journal of Hydrology 328: 192-199.

Locante, J. et D.D. Malinowski. 1973. Tritium in pressurized water reactors. Dans : *Tritium*. (A.A. Moghissi et M.W. Carter, éd.). Messenger Graphics. Las Vegas, Nevada. p. 45-57.

Long, G., J. F. Cordova et S. Tanrikulu (2004). *An Analysis of AERMOD Sensitivity to Input Parameters in the San Francisco Bay Area*. 13e conférence sur les « Applications of Air Pollution Meteorology with the Air and Waste Management Assoc. »

Lucas, L.L., et M.P. Unterweger. 2000. *Comprehensive review and critical evaluation of the half-life of tritium*. J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol., 105: 541-549.

MacCracken, M., (2008). *Prospects for Future Climate Change and the Reasons for Early Action*. J. of the Air & Waste Management Assoc. Vol. 58, 735-786.

Magee, C. B., J. E. Fulenwider, G. J. Rotariu, et R. P. Petersen. 1960. *A Study of the Feasibility and Economics of Radioisotope Production in Power Reactors*, rapport final, USAEC Report AECU-4355, Booz-Allen Applied Research, Inc.

Mancinelli, R.L., 1995. *The regulation of methane oxidation in soil*. Ann. Rev. Microbiol., 49: 581-605.

Martell, E.A. 1959. *Artificial Radioactivity from Nuclear Tests up to November 1958*. GRD Res. Notes No. 19, rapport AFCRN-TN-5 9-444, Air Force Cambridge Research Laboratories.

Martell, E. A. 1963. *On the inventory of artificial tritium and its occurrence in atmospheric methane*, J. Geophys. Res., 68: 3759-3769.

Matic-Vukmirovic, Z. 1965. « Determination of the tritium buildup in a heavy-water-moderated reactor ». Dans : *Proceedings of the Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy*. 3: 407-413. Genève, Nations Unies, New York.

McCubbin, D., K.S. Leonard, T.A. Bailey, J. Williams et P. Tossell. 2001. *Incorporation of organic tritium (3H) by marine organisms and sediment in the Severn Estuary/Bristol Channel (UK)*. Marine Pollution Bulletin, 42: 852-863.

McDougall, N. 2007. Annual Summary and Assessment of Environmental Radiological Data for 2006. B-REP-03419-0007. Bruce Power.

McFarlane, J.C., R.D. Rodgers et D.V. Bradley Jr. 1978. *Environmental tritium oxidation in surface soil*. Environ. Sci. Technol., 12: 590-593.

McFarlane, J.C., R.D. Rodgers et D.V. Bradley Jr. 1979. *Tritium oxidation in surface soils. A survey of soils near five fuel reprocessing plants*. Environ. Sci. Technol., 13: 607-608.

Miskel, J.A. 1964. « Characteristics of radioactivity produced by nuclear explosives ». Dans : *Engineering with Nuclear Explosives*. Proceedings of the third plowshare symposium, Livermore, Californie. P. 153-160, (TID-7695).

Miskel, J.A. 1973. « Production of tritium by nuclear weapons ». Dans : *Tritium* (A.A. Moghissi et M.W. Carter, éd.). Messenger Graphics. Phoenix et Las Vegas. P. 79-85.

Mishima, J., et C. M. Steelee (2002). *Oxidation of Tritium Gas under Accident and Transport Conditions*. Rapport du DOE. LA-UR-02-3803.

Mitchel, L. 1976. *Tritium inventories of the world oceans and their implications*. Nature 263:103-106.

Miyamoto, K., K. Kimura et S. Hongo. 1995. *A transfer model of tritium in a local hydrosphere*. Fusion Technol. 28: 910-917.

Moeller, T., 1954. *Inorganic Chemistry*. John Wiley & Sons, Inc.: New York.

Momoshima, N., M. Inoue, Y. Nakamura, T. Kaji, et Y. Takashima. 1986. *Recent environmental tritium levels in Japan-II coastal seawater and lake water*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 104:141-150.

Momoshima, N., T. Okai, T. Kaji, et Y. Takashima, 1991. *Distribution and transformation of various chemical forms of tritium in the environment*. Radiochim. Acta., 54: 129.

Momoshimam B., T.Yamaguchi, T. Toyoshima, Y. Nagao, M. Takahashi, M. Takamura, et Y. Nakamura. 2007. *Tritium in the Atmospheric Environment*. J. Radioanal. Nucl. Chem. Avril 2007.

Morgenstern, U. 2004. *Tritium dating of water and ice*. New Zealand Science Review, 61: 42-44.

Murphy, C.E. Jr., et M. M. Pendergast. 1979. « Environmental transport and cycling of tritium in the vicinity of atmospheric releases ». Dans : *Behaviour of Tritium in the Environment*. AIEA, Vienne. p. 361-372.

Murphy, C.E. Jr., L.R. Baurer, D.W. Hayes, W.L. Marter, C.C. Zeigler, D.E. Stephenson, D.D. Hoel, et D. M. Hamby. 1991. *Tritium in the Savannah River Site Environment*. WSRC-RP-90-424-1. Révision 1, Savannah River Site, Aiken, SC.

Mutch, R.D., et J. D. Mahony. 2008. *A study of tritium in municipal solid waste leachate and gas*. Fusion Science and Technology, 54:305-310.

Nations Unies (UN). 1960. *Tritium from Nuclear Tests*, A/AC.82/R.105/Add. 1, Secretariat, Nations Unies.

Nations Unies (UN). 1977. *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. Comité scientifique des Nations-Unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants. Rapport 1977 présenté à l'Assemblée générale, avec annexes. United Nations sales publication no. E.77.IX.1. New York.

NCRP. 1996. *Screening Models for Releases of Radionuclides to Atmosphere, Surface Water and Ground*. Rapport NCRP No. 123. National Council on Radiation Protection and Measurements.

NCRP. 1979. *Tritium in the Environment*. NCRP No. 62. National Council on Radiation Protection and Measurements.

Neil, B.C.J. 1991. *An environmental pathway model for chronic emissions of tritiated hydrogen gas*. Rapport de l'Ontario Hydro HSD-ST-91-21.

Neil, B.C.J. 1992. *Transfer factors for the environmental pathway model CEDM-HT for chronic emissions of tritiated hydrogen gas*. Rapport d'Ontario Hydro HSD-ST-91-45.

Newkirk, L. L. 1963. *Calculation of Low-Energy Neutron Flux in the Atmosphere by the Sn Method*, J. Geophys. Res., 68: 1825-1833.

Noguchi, H., S. Fukutani, S. Yokoyama et N. Kinouchi (2001). Deposition of Tritiated Water Vapour to a Water Surface in an Outdoor Field. Radiation Protection Dosimetry, 93:167-172.

Novelli, P.C., P.M. Lang, K.A. Masarie, D.F. Hurst, R. Myers et J.W. Elkins. 1999. *Molecular hydrogen in the troposphere: Global distribution and budget*. J. Geophys. Res., 104:427-444.

ONU, OIT et OMS (Organisation des Nations Unies, Organisation internationale du travail et Organisation mondiale de la Santé), 1987. *Quelques radionucléides : tritium, carbone-14, krypton-85, strontium-90, iode, césium-137, radon, plutonium. Critères d'hygiène de l'environnement 25*. ISBN 92 4 254085 4.

Ostlund, H.G. et R.A. Fine. 1979. « Oceanic distribution and transport of tritium ». Dans : *Behaviour of Tritium in the Environment*. AIEA, Vienne, p. 303-314.

Pasquill, F. (1962). *Atmospheric Diffusion: The Dispersion of Windborne Material from Industrial and Other Sources*. D. Van Norstand Company, Ltd., Londres, 1962.

Patterson, C.M. 1958. *Radiation Protection Considerations in a Heavy-Water-Moderated Reactor*, in Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Genève, Vol. 23, p. 295-301, Nations Unies, New York.

Paunescu, N., M. Cotariea, D. Galeriu, R. Margineanu et N. Mocanu. 1999. *Evaluation of environmental tritium level in preoperational period of Cernavoda CANDU Nuclear Power Plant*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 239: 465-470.

Qiu, X., (2002). *High-Resolution Mesoscale Meteorological Modelling in Southern Ontario*. dissertation de doctorat, Faculty of Earth and Space Science, York University.

Radwan, I., Z. Pietrzak-Flis et T. Wardaszko. 2001. *Tritium in surface waters, tap water and in precipitation in Poland during the 1994-1999 period*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 247: 71-77.

Roether, W. 1967. « Estimating the tritium input to groundwater from wine samples: Groundwater and direct run-off contribution to Central European surface waters. » Dans : *Isotopes in Hydrology*. Agence internationale de l'énergie atomique, Vienne, p. 73-79.

Roether, W. 1989. « On oceanic boundary conditions for tritium, on tritiugenic ^{3}H and on the tritium-^{3}He age concept ». Dans : *Oceanic Circulation Models: Combining Data and Dynamics*. Edited by D.L.T. Anderson and J. Willebrand. P. 377-407. Kluwer Acad. Norwell, Mass.

Roether, W., R. Well, A. Putzka et C.Rüth. 1998. *Component separation of oceanic helium*. Journal of Geophysical Research, 103:27.931-27,946.

Sasaki, M., H. Kimura, H. Kudou et T. Kudou. 2000. *Concentration of tritium in water vapor and precipitation on Mt. Hakkoda*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 243: 299-303.

Schell, W.R., S. Sauzay et B.R. Payne. 1974. « World distribution of environmental tritium. » Dans : *Physical Behaviour of Radioactive Contaminants in the Atmosphere*. IAEA/STI/PUBI3451, AIEA, Vienne, p. 374-385.

Sejkora, K. (2006). *Atmospheric Sources of Tritium and Potential Implication to Surface and Groundwater Monitoring Efforts*. The 16th Annual RETS-REMP Workshop, Mashantucket, CT, du 26 au 28 juin 2006.

Serot,O., C. Wagemans et J. Heyse. 2005. *New results on Helium and Tritium Gas Production from Ternary Fission*. International Conference on Nuclear Data for Science and Technology. AIP Conference Proceedings, 769:857-860.

Sills, D.M.L., (1998) : *Lake and Land Breezes in Southwestern Ontario: Observations, Analyses and Numerical Modeling*. Dissertation de doctorat. York University.

Sloth, E.N, D.L. Horrocks, E.J. Boyce et M.H. Studier. 1962. *Tritium in the thermal neutron of uranium-235*, J. Inorg. Nucl. Chem., 24: 337-341.

Smith, H.A. et K. R. Fitch. 1963. *Determination of the separation factor for the vaporization of mixtures of protium and tritium oxides*. J. Phys. Chem., 67: 920-921.

Smith, J.M. et R.S. Gilbert. 1973. « Tritium experience in boiling water reactors. » Dans : *Tritium* (A.A. Moghissi et M.W. Carter, éd.). Messenger Graphics. Las Vegas, Nevada. p. 57-68.

Spencer, F.S., L. Vereecken-Sheehan, P.A. Davis, W.J.G. Workman, M.J. St. Aubin, D. Galeriu et B.D. Amiro. 1996. *1994 HT chronic release experiment at Chalk River: Database report*. Rapport de l'Ontario Hydro A-NBP-96-51-CON, EACL-11736, COG-96-603-I.

Spencer, F.S. et L. Vereecken-Sheehan. (1994). *HTO Concentration Relationships Between Air, Soil and Vegetation and Seasonal Dependence of HT Deposition to Soil*. Ontario Hydro Technologies, rapport no A-NBP-94-36-K.

Stamoulis, K., K. Loannides, P. Kassomenos et A. Vlachogianni. 2005. *Tritium concentration in rainwater samples in northwestern Greece*. Fusion Science and Technology 48: 512-515.

Stead, F. W. 1963. *Tritium distribution in ground water around large underground fusion explosions*. Science 142: 1163-1165.

Stebbins III, A. K. 1961. *Technical Analysis Report, Second Special Report on the High Altitude Sampling Program (HASP)*, Report DASA539B, Defense Atomic Support Agency.

Suess, H.E. 1958. *The radioactivity of the atmosphere and hydrosphere*. Annu. Rev. Nucl. Sci., 8: 243.

Sültenfuß, J., 2008. *Tritium: tracing the hydrological cycle Tritium – the radioactive hydrogen isotope: A multi-purpose environmental tracer for the hydrological cycle*. http://www.radioaktivitaet.uni-bremen.de/Blockseminar/4_Sueltenfuss.pdf.

Spencer, F.S. et L. Vereecken-Sheehan. 1994. *HTO Concentration Relationships between Air, Soil and Vegetation and Seasonal Dependence of HT Deposition to Soil*. Ontario Hydro Technologies Report No A-NBP-94-36-K, COG 94-239.

SSI. 2008. 2007 *Environmental Monitoring Program Annual Compliance Report*. Shield Source Incorporated.

Tadmor, J. 1973. *Deposition of ^{85}Kr and tritium released from a nuclear fuel reprocessing plant*. Health Phys. 24: 30-43.

Taylor, C. B. 1964. *Tritium in Southern Hemisphere Precipitation, 1953-1964*. Nouvelle-Zélande, New Zealand Report INS-R-32.

Taylor, C. B., H. A. Polach, et T. A. Rafter. 1963. *Tritium Measurements in Nature*. A Review of the Work of the Tritium Laboratory Institute of Nuclear Sciences, Nouvelle-Zélande, New Zealand Report INS-R-24.

Thompson, S. O. et 0. A. Schaeffer. 1955. *Radiation induced equilibrium of hydrogen-deuterium mixtures*. J. Chem. Phys 23: 759-760.

Topp, E. et E. Pattey. 1997. *Soils as sources and sinks for atmospheric methane*. Revue canadienne de la science du sol = Can. J. Soil Sci., 77: 167-178.

Transports Canada, 2004. *Guide pour les médecins examinateurs de l'aviation civile*. TP 13312F. http://www.tc.gc.ca/AviationCivile/mac/menu.htm.

Trevorrow, L.E., B.J. Kullen, R.L. Jarry et M.J. Steindler. 1974. *Tritium and noble gas fission products in the nuclear fuel cycle*. I. Reactors. ANL-8102.

UNSCEAR (Comité scientifique des Nations-Unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants). 1977. Nations Unies. *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. Rapport 1977 du Comité scientifique des Nations-Unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants, présenté à l'Assemblée générale, avec annexes. United Nations sales publication no. E.77.IX.I. New York.

UNSCEAR (Comité scientifique des Nations-Unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants). 2000. Nations Unies. *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. Rapport 2000 du Comité scientifique des Nations-Unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants, présenté à l'Assemblée générale, avec annexes. United Nations sales publication no. E.77.IX.3. New York.

Unterweger, M.P., B.M. Coursey, F.J. Schima et W.B. Mann. 1980. *Preparation and Calibration of the 1978 National Bureau of Standards Tritiated-water Standards*. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 31: 611-614.

US-DOE (United States – Department of Energy), 1993. *Doe Fundamentals Handbook Nuclear Physics and Reactor Theory*, Volume 2 of 2. DOE-HDBK-1019/2-93.

US EPA (2003). *Comparison of Regulatory Design Concentrations: AERMOD vs ISCSt3, CTDMPLUS, ISC-PRIME*. U.S. Environmental Protection Agency Office of Air Quality Planning and Standards Emissions Monitoring and Analysis Division, Research Triangle Park, North Carolina. EPA-454/R-03-002.

Verzaux, P. 1952. *Étude de la section de choc du lithium pour les neutrons*. Journal de physique et le radium, 13 (1): 21-27.

Von Buttlar, H. 1963. *Stratospheric Tritium*, Geochim. Cosmochim. Acta, 27: 741-751.

Von Buttlar, H. et W. F. Libby. 1955. *Natural distribution of cosmic-ray produced tritium, Part II*. J. Inorg. Nucl. Chem., l: 75-91.

Walton, A., E.L. Fisher, et P.W. Krey. 1962. *Studies o f Nuclear Debris in Precipitation*. USAEC Report NYO-9532, New York Operations Office.

Watson, J.C. 1961. *High-energy alpha particles and tritons from the spontaneous fission of californium-252*. Phys. Rev. 121: 230-231.

Wegner, H.E. 1961. *Additional long-range particles from the spontaneous fission of Cf-252*. RUN. Am. Phys. Soc. 6: 307.

Wehner, G. 1979. « Discharges of tritium to the environment from unrestricted use of consumer products containing this radionuclide. » Dans : *Behaviour of Tritium in the Environment*. AIEA, Vienne, p. 79-91.

Weiss, W., J. Bullacher et W. Roether. 1979a. « Evidence of pulsed discharges of tritium from nuclear energy installations in Central Europe precipitation. » Dans : *Behaviour of Tritium in the Environment*. IAEA-SM-232/18, p. 17-30.

Weiss, W., W. Roether et E. Dreisigacker. 1979b. « Tritium in the North Atlantic Ocean: Inventory, input and transfer into the deep water ». Dans : Behaviour of Tritium in the Environment. IAEA-SM-232/98, p. 315-336.

Wilson, A. T. et G. J. Ferguson. 1960. *Origin of terrestrial tritium*. Geochim. Cosmochim. Acta, 18: 273-277.

Wolfgang, R. 1961. *Origin of high tritium content of atmospheric methane, hydrogen, and stratospheric water*. Nature, 192:1279-1280.

Yamazawa, H. 2001. *A one-dimensional dynamical soil–atmosphere tritiated water transport model*. Environmental Modelling and Software, 16:739-751.

Yang, J. Y. et L. R Gevantman. 1964. Tritium beta-radiation-induced isotopic exchange in the water vapour. J. Phys Chem., 68: 3115-3119.

Yang, J. Y. et L. R Gevantman. 1960. *Tritium Beta-Radiation-Induced Isotopic Exchange in the T2-H20 System*. Report USNRDGTK-471. Naval Radiological Defense Laboratory.

Yook, D., K.J. Lee, Y. Lee et D. Hong. 2006. *Estimation of the tritium behavior in the Pebble Type Gas Cooled Reactor for hydrogen production*. Nucl. Sci. & Technol., 43(12): 1522-1529.

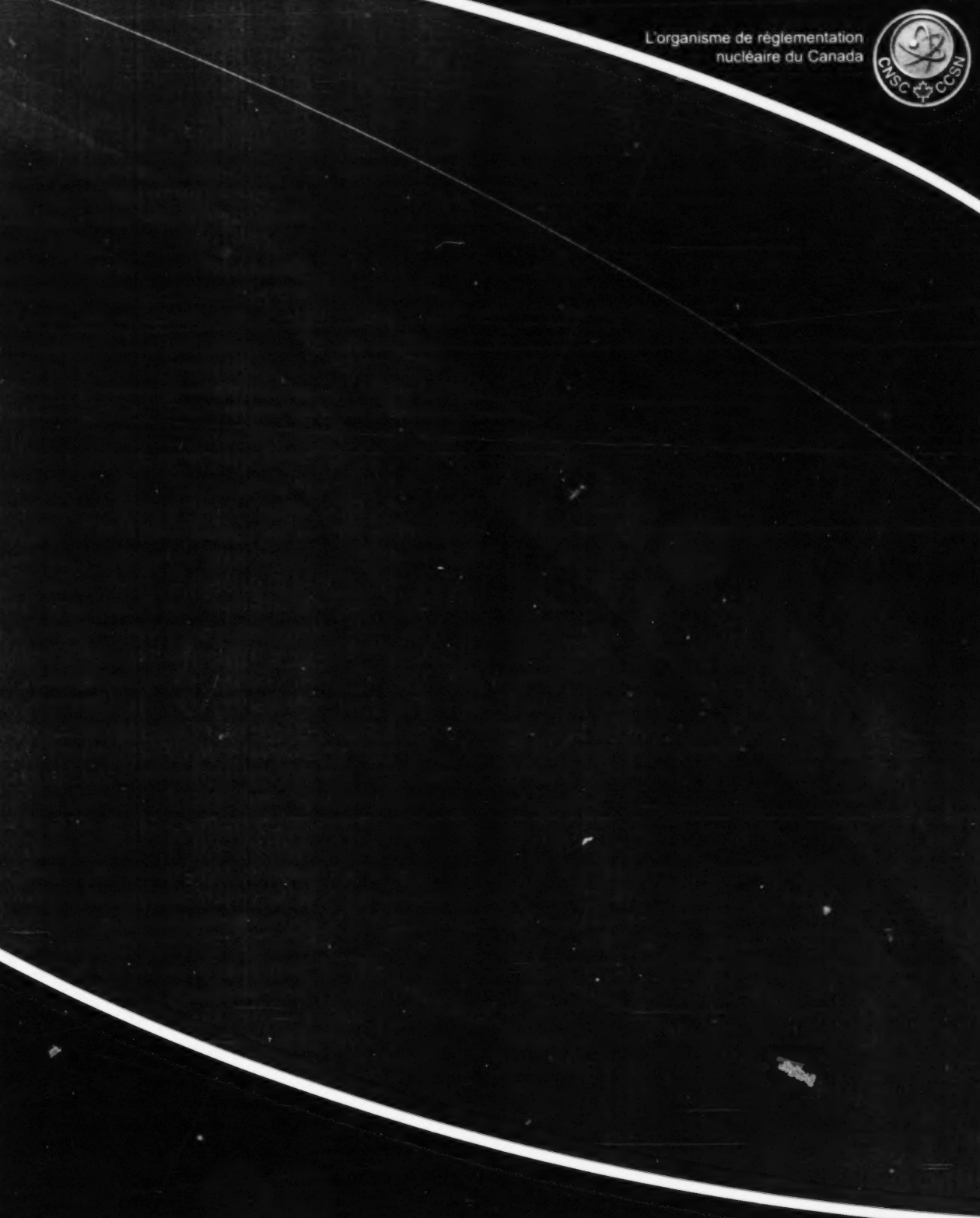
Young, P.G. et D.G. Foster, Jr. 1972. *An evaluation of the neutron and gamma-ray production cross sections for nitrogen*. Los Alamos Scientific Laboratory, LA-4725 (ENDF-173), UC-34.

Zahn, A., V. Barth, K. Pfeilsticker, et U. Platt. 1998. *Deuterium, oxygen-18, and tritium as tracers for water vapour transport in the lower stratosphere and tropopause region*. J. Atmos. Chem., 30: 25-47.

Zehnder, A.J.B. et T.D. Brock, 1979. *Methane formation and methane oxidation by methanogenic bacteria*. J. of Bacteriology, 137(1): 420-432.

Zerriffi, H., 1996. Tritium: *The environmental, health, budgetary, and strategic effects of the Department of Energy's decision to produce tritium*. Institute for Energy and Environmental Research (IEER) Technical Report, http://www.ieer.org/reports/tritium.html.

L'organisme de réglementation
nucléaire du Canada



Commission canadienne
de sûreté nucléaire

Canadian Nuclear
Safety Commission

Canada